

EUR 3623 f

COMMUNAUTE EUROPEENNE DE L'ENERGIE ATOMIQUE - EURATOM

**INVESTIGATIONS POUR LE CALCUL DU
RELACHEMENT DE PRODUITS DE FISSION
DES ELEMENTS COMBUSTIBLES IRRADIES
EN VUE DE LEUR TRANSPORT**

Partie I

par

R. CROSTINI (CNEN) et A. ROSSI (SORIN)

1967



Rapport établi par SORIN

Società Ricerche Impianti Nucleari, Saluggia (Vercelli) - Italie

Contrat EURATOM/CNEN/MONTECATINI-EDISON N° 032-66-1 ECII

AVERTISSEMENT

Le présent document a été élaboré sous les auspices de la Commission de la Communauté Européenne de l'Energie Atomique (EURATOM).

Il est précisé que la Commission d'EURATOM, ses contractants, ou toute personne agissant en leur nom :

ne garantissent pas l'exactitude ou le caractère complet des informations contenues dans ce document, ni que l'utilisation d'une information, d'un équipement, d'une méthode ou d'un procédé quelconque décrits dans le présent document ne porte pas atteinte à des droits privés ;

n'assument aucune responsabilité pour les dommages qui pourraient résulter de l'utilisation d'informations, d'équipements, de méthodes ou procédés décrits dans le présent document.

Ce rapport est vendu dans les bureaux de vente indiqués en 4^e page de couverture

au prix de FF 10,—	FB 100,—	DM 8,—	Lit. 1250	Fl. 7,25
--------------------	----------	--------	-----------	----------

Prière de mentionner, lors de toute commande, le numéro EUR et le titre qui figurent sur la couverture de chaque rapport.

Imprimé par Vanmelle S.A.
Bruxelles, Septembre 1967

Le présent document a été reproduit à partir de la meilleure copie disponible.

EUR 3623 f

INVESTIGATIONS FOR THE CALCULATION OF THE FISSION-PRODUCT RELEASE FROM IRRADIATED FUEL ELEMENTS WITH A VIEW TO THE TRANSPORT THEREOF

Part I by R. CROSTINI (CNEN) and A. ROSSI (SORIN)

European Atomic Energy Community — EURATOM

Report prepared by SORIN — Società Ricerche Impianti Nucleari, Saluggia (Vercelli) — Italy

Contract EURATOM/CNEN/MONTECATINI-EDISON N° 032-66-1 ECII
Brussels, September 1967 — 70 Pages — 2 Figures — FB 100

The final report consists of nine parts, published separately. This volume, Part I, comprises :

- (a) An account of the origin of the present study, which takes into account the IAEA regulation on the transportation of irradiated fissile materials ;

EUR 3623 f

INVESTIGATIONS FOR THE CALCULATION OF THE FISSION-PRODUCT RELEASE FROM IRRADIATED FUEL ELEMENTS WITH A VIEW TO THE TRANSPORT THEREOF

Part I by R. CROSTINI (CNEN) and A. ROSSI (SORIN)

European Atomic Energy Community — EURATOM

Report prepared by SORIN — Società Ricerche Impianti Nucleari, Saluggia (Vercelli) — Italy

Contract EURATOM/CNEN/MONTECATINI-EDISON N° 032-66-1 ECII
Brussels, September 1967 — 70 Pages — 2 Figures — FB 100

The final report consists of nine parts, published separately. This volume, Part I, comprises :

- (a) An account of the origin of the present study, which takes into account the IAEA regulation on the transportation of irradiated fissile materials ;

EUR 3623 f

INVESTIGATIONS FOR THE CALCULATION OF THE FISSION-PRODUCT RELEASE FROM IRRADIATED FUEL ELEMENTS WITH A VIEW TO THE TRANSPORT THEREOF

Part I by R. CROSTINI (CNEN) and A. ROSSI (SORIN)

European Atomic Energy Community — EURATOM

Report prepared by SORIN — Società Ricerche Impianti Nucleari, Saluggia (Vercelli) — Italy

Contract EURATOM/CNEN/MONTECATINI-EDISON N° 032-66-1 ECII
Brussels, September 1967 — 70 Pages — 2 Figures — FB 100

The final report consists of nine parts, published separately. This volume, Part I, comprises :

- (a) An account of the origin of the present study, which takes into account the IAEA regulation on the transportation of irradiated fissile materials ;

- (b) A summary of the steps which led up to the work programme (bibliographical analysis of the properties of fissile and cladding materials, test calculations of fission product release under normal transportation conditions and after a thermal accident during transportation) ;
- (c) A relatively detailed summary of Parts II-IX, illustrating and explaining each in the light of its practical aims and showing the existing gaps and uncertainties ;
- (d) A general analysis of measures which would fill in some of the gaps in question ;
- (e) Proposals for concrete research on the release of fission products by irradiated fuel elements.

- (b) A summary of the steps which led up to the work programme (bibliographical analysis of the properties of fissile and cladding materials, test calculations of fission product release under normal transportation conditions and after a thermal accident during transportation) ;
- (c) A relatively detailed summary of Parts II-IX, illustrating and explaining each in the light of its practical aims and showing the existing gaps and uncertainties ;
- (d) A general analysis of measures which would fill in some of the gaps in question ;
- (e) Proposals for concrete research on the release of fission products by irradiated fuel elements.

- (b) A summary of the steps which led up to the work programme (bibliographical analysis of the properties of fissile and cladding materials, test calculations of fission product release under normal transportation conditions and after a thermal accident during transportation) ;
- (c) A relatively detailed summary of Parts II-IX, illustrating and explaining each in the light of its practical aims and showing the existing gaps and uncertainties ;
- (d) A general analysis of measures which would fill in some of the gaps in question ;
- (e) Proposals for concrete research on the release of fission products by irradiated fuel elements.

EUR 3623 f

COMMUNAUTE EUROPEENNE DE L'ENERGIE ATOMIQUE - EURATOM

INVESTIGATIONS POUR LE CALCUL DU
RELACHEMENT DE PRODUITS DE FISSION
DES ELEMENTS COMBUSTIBLES IRRADIES
EN VUE DE LEUR TRANSPORT

Partie I

par

R. CROSTINI (CNEN) et A. ROSSI (SORIN)

1967



Rapport établi par SORIN

Società Ricerche Impianti Nucleari, Saluggia (Vercelli) - Italie

Contrat EURATOM/CNEN/MONTECATINI-EDISON N° 032-66-1 ECII

RESUME

Le présent rapport final comprend neuf parties publiées séparément.
Cette Partie I comprend :

- a) l'explication de la genèse de la présente étude qui tient compte du règlement de l'A.I.E.A. en matière de transport de matières fissiles irradiées ;
- b) le résumé des développements ayant abouti par approximations successives au programme de travail (analyse bibliographique des propriétés des matières fissiles et de gainage, essais de calcul du relâchement des produits de fission en condition normale de transport et à la suite d'un accident thermique au cours du transport ;
- c) le résumé relativement détaillé des huit parties successives, illustrant et motivant leur contenu respectif compte tenu des buts pratiques visés, tout en montrant les lacunes et les incertitudes existantes ;
- d) l'analyse générale des actions susceptibles de combler une partie des lacunes constatées ;
- e) la proposition d'actions concrètes de recherche pour l'étude du relâchement de produits de fission par des éléments combustibles irradiés.

Le rapport détaillé de chacune des huit parties successives (Parties II à IX) peut être obtenu, uniquement en langue italienne, sur simple demande adressée à la Direction Générale Industrie - Economie, « Transport des matières radioactives ».

MOTS-CLES

TRANSPORT
RADIOACTIVITY
FISSION PRODUCTS
FUEL ELEMENTS
NUMERICALS

Legal aspects

1. INTRODUCTION

On sait que les normes réglementaires concernant le projet de l'emballage destiné au transport de combustible nucléaire irradié ont fait l'objet d'études attentives sur le plan international de la part d'organisations telles que l'A.I.E.A., le R.I.D., l'A.D.R., l'I.M.C.O., l'I.A.T.A. Ces études ont abouti (notamment à l'A.I.E.A.) à des résultats positifs en ce qui concerne les différentes étapes de développement des problèmes précités.

En particulier, les considérations sur la transmission vers l'extérieur de la chaleur de décroissance provenant des produits de fission, ainsi que sur l'intégrité des éléments et de l'emballage en cas d'accident, de choc et d'incendie, ont fait l'objet des développements décrits ci-dessous.

Au cours de la révision des recommandations de l'A.I.E.A. (édition 1961 /1/), il a été possible, dans une première phase, de parvenir à établir des normes ayant pour but de limiter la température maximale atteinte par les éléments combustibles dans des conditions normales de transport ainsi que dans des conditions accidentelles à une valeur inférieure à la "température de défaillance" (en anglais: "failure temperature").

Par température de défaillance d'un article de matière radio-active, on entend la température minimale de cette matière radio-active que l'article en question, intact à l'origine, peut relâcher à raison de 0,1 % de son contenu radio-actif au cours d'une période de 48 heures, sans toutefois que l'activité relâchée soit supérieure à 100 C bêta-gamma et à 1 C alpha.

On entend par "article de matière radio-active" toute matière radio-active qui se présente sous "forme spéciale" (pour la définition de "forme spéciale" voir le paragraphe A-2.13 de la référence /2/), ou qui se trouve à l'intérieur d'une enveloppe quelconque, comme gainage des éléments combustibles, capsules, etc.

Les difficultés pour déterminer la température de défaillance et le fait que dans sa définition intervienne la notion bien plus caractéristique de relâchement, ont conduit, par la suite, à abandonner la notion de température de défaillance et à fixer un critère d'évaluation portant sur l'efficacité de l'emballage basé directement sur les relâchements d'activités admissibles dans des conditions normales de transport ainsi que dans des conditions accidentelles.

Les limites suivantes ont donc été fixées :

- 1) pour des conditions normales de transport, on admet l'échappement hors du colis de gaz contaminés et de vapeurs provenant du milieu caloporteur primaire, à condition que le taux de relâchement de l'activité exprimé en microcuries par heure ne dépasse pas 10^{-6} de l'activité admise pour un emballage du type A.

L'activité admise pour des emballages du type A (voir § C.1.1 référence [27]) est la suivante :

Groupe	Activité maximale admise	Groupe	Activité maximale admise
I	1 mC	V	20 C
II	50 mC	VI	1.000 C
III	3 C	VII	1.000 C
IV	20 C	VIII	1.000 C

En ce qui concerne la définition des radionucléides appartenant aux différents groupes, voir point A 2.6 référence [27].

- 2) pour des conditions normales de transport et pour des emballages conçus pour permettre une décompression continue en cours de transport, on admet que du colis s'échappent des gaz contaminés et des vapeurs en provenance du milieu caloporteur primaire, à condition que le taux de relâchement (*) de l'activité, exprimé en microcuries par heure, ne dépasse pas 5.10^{-4} de l'activité admise pour un emballage du type A.
- 3) pour des conditions accidentelles de transport, c'est-à-dire après que l'emballage a été soumis aux épreuves de résistance au choc et d'incendie, on admet que du colis s'échappent des gaz contaminés sous forme de vapeurs ou de liquides en provenance du milieu caloporteur primaire ou de l'espace initialement occupé par ce milieu, à condition que l'activité totale de relâchement ne dépasse pas, pour une période d'une semaine après ces épreuves, l'activité admise pour un emballage du type A.

Par ailleurs, il s'est avéré que la preuve de l'efficacité de l'emballage pouvait être fournie, d'une façon générale, soit par des essais soit par des calculs.

(*) Release rate.

Ainsi, si l'on tient compte de ce que prévoient les recommandations de l'A.I.E.A., il apparaît que le projet d'emballage exige l'évaluation de l'activité présente dans le milieu caloporteur primaire (liquide ou gazeux) et dans l'espace initialement occupé par ce milieu.

Cette activité comprendra :

- a) l'activité présente dans le milieu réfrigérant au moment du remplissage de l'emballage;
- b) l'activité relâchée par les éléments, à la suite d'une corrosion éventuelle de leur gainage par le milieu réfrigérant ou à la suite de diffusions à travers le gainage des produits de fission gazeux contenus dans l'élément lui-même ou bien encore à la suite du relâchement des produits de fission par rupture du gainage due à la pression des gaz inertes et des gaz de fission à la température atteinte au cours du transport;
- c) l'activité relâchée par les éléments endommagés en raison de l'effet des contraintes thermiques et mécaniques dérivant d'accidents, de choc et d'incendie.

Cette évaluation, toutefois, est extrêmement complexe au stade actuel en raison de l'insuffisance des données de littérature ainsi qu'en raison de l'insuffisance des méthodes de calcul permettant, en particulier, d'évaluer les effets dynamiques des chocs.

Le travail abordé par le présent contrat a donc pour but de fournir une contribution partielle à la solution de certains aspects des problèmes évoqués ci-dessus. En particulier, on s'est efforcé, à la suite d'une analyse bibliographique des données de base, d'établir des méthodes de calcul permettant d'évaluer l'importance du relâchement des produits de fission par des éléments combustibles de différents types, après irradiation, en fonction de la température et compte tenu des différents processus physico-chimiques pouvant se produire lors d'un accident thermique en cours de transport.

On a également cherché, une fois les principales lacunes localisées, à formuler des propositions pour une solution au moins partielle de certains problèmes encore non résolus.

2. PROGRAMME DE TRAVAIL

Il a semblé utile de donner, dans ce paragraphe, un aperçu historique des événements qui ont abouti, par approximations successives, à la rédaction d'un programme de travail précis.

En juillet 1965, une réunion s'est tenue au C.C.R. d'Ispra entre les représentants d'Euratom, du C.N.E.N. et de la Montecatini sous les auspices d'Euratom.

Sur la base des normes existantes à l'époque, la nécessité s'était fait sentir d'étudier la possibilité d'élaborer un programme d'études et d'essais expérimentaux en vue de déterminer la température de défaillance des éléments combustibles irradiés pour les cas qui présentent un intérêt pratique immédiat.

Le programme préliminaire d'études, comprenant des recherches bibliographiques et des essais de calculs, avait été jugé nécessaire pour pouvoir établir, en connaissance de cause, le programme ultérieur qui porte sur des essais expérimentaux.

La détermination de la valeur de la température de défaillance constituait alors une référence nécessaire pour l'évaluation du degré de sécurité d'un envoi tant dans les conditions normales de transport que dans les conditions accidentelles. En fait, cette valeur intervenait soit dans les calculs de transmission de la chaleur de décroissance des éléments transportés, soit dans l'examen des conditions réalisées à la suite d'un accident de choc ou d'incendie, à la suite de la perte du milieu caloporteur primaire ainsi qu'à la suite de l'arrêt des dispositifs mécaniques prévus sur le récipient pour la transmission de la chaleur.

Au cours de cette réunion, deux problèmes distincts avaient retenu l'attention: précisément sur le comportement des éléments combustibles intègres et le comportement des éléments combustibles endommagés.

En ce qui concerne le comportement des éléments combustibles intègres, on a avancé l'hypothèse qu'il serait possible, en s'appuyant sur des informations trouvées dans la littérature, d'évaluer la température de défaillance par le calcul; par contre, pour les éléments combustibles endommagés, le problème était plus complexe, notamment en ce qui concerne l'importance et le type des dommages à prendre en considération. Au cours de cette réunion, on avait relevé que l'Euratom avait déjà confié, dans le cadre d'un certain nombre de contrats, un programme d'essais portant sur les emballages du type B et que l'on pouvait alors prévoir que les résultats obtenus dans le cadre de ce programme auraient également servi à l'évaluation du dommage subi, dans le cas d'un accident, par les éléments combustibles transportés.

Une réunion tenue le 20 octobre 1965 au C.C.R. d'Ispra confirma, à la suite de l'examen des documents de travail déjà préparés par le C.N.E.N., la Montecatini et le C.C.R. d'Ispra, la nécessité de procéder à une étude approfondie du problème s'appuyant aussi bien sur la recherche bibliographique que sur des études théoriques et un premier programme de travail fut élaboré, dont le détail figure à l'Annexe A. Ce programme s'appuyait sur la notion de température de défaillance qui était à l'époque à la base des discussions de l'A.I.E.A.

Il y a lieu, toutefois, de rappeler que, déjà au cours de cette réunion, l'on avait mis en évidence d'une façon critique que, d'un point de vue pratique, dans le cas d'une rupture du gainage de l'élément combustible, l'activité relâchée de l'élément, soit sous forme de produits de fission gazeux ou de produits de corrosion de la substance fissile, pouvait déjà avoir l'ordre de grandeur des valeurs d'activité adoptées pour la définition de la température de défaillance, bien que la température effectivement atteinte puisse encore être inférieure à celle de la défaillance.

Par conséquent, une attention particulière devait être portée à la résistance de la structure du gainage de l'élément combustible. En fait, l'intégrité de ce gainage au cours du transport forme l'unique barrière au relâchement des produits de fission dans le milieu réfrigérant primaire en une quantité inférieure aux valeurs d'activité admises pour la définition de la température de défaillance.

Au cours du développement du programme de travail ci-dessus, les critères d'appréciation de l'efficacité d'un emballage pour le transport des "grandes sources radio-actives" et, par conséquent, également pour le transport des éléments combustibles irradiés, ont été modifiés par l'A.I.E.A.

Ainsi que nous l'avons déjà rappelé dans notre introduction, la notion de "température de défaillance" a été abandonnée et l'on a établi un critère de jugement relatif à l'efficacité de l'emballage basé directement sur des relâchements d'activité vers le milieu extérieur et provenant du milieu caloporteur primaire ou de l'espace initialement occupé par ce milieu.

Ceci a rendu nécessaire une révision du programme déjà établi et un nouvel examen des résultats des travaux entamés.

Au cours d'une réunion qui s'est tenue à Rome le 30 mars 1966 au C.N.E.N., les représentants de l'Euratom, du C.N.E.N. et de la Montecatini ont discuté l'ordre du jour suivant :

- 1) Synthèses et conclusions des travaux du Panel du mois de février 1966 auxquels participaient les experts de Vienne.
- 2) Incidence de ces résultats sur le programme d'études établi.
- 3) Examen des résultats de l'étude entreprise.

4) Nouvelle orientation du programme en fonction des points 1 et 2.

Le programme d'études définitivement établi en vue de recueillir les informations nécessaires à l'évaluation du relâchement de l'activité du combustible vers le milieu caloporteur primaire fut le suivant :

1. Etudes bibliographiques

Pour les types d'éléments combustibles caractéristiques choisis parmi les suivants :

a) Uranium naturel gainé avec :

- i - Magnox (ex.: Latina)
- ii - aluminium (ex.: FR 2)
- iii - acier inoxydable

b) UAl_3 gainé d'aluminium (ex.: Ispra I ou MTR)

c) UO_2 gainé avec :

- i - acier inoxydable (ex.: Trino Vercellese)
- ii - Zircaloy (ex.: Garigliano)

Examen détaillé des documents relatifs :

1.1 Aux caractéristiques mécaniques des matériaux constituant les éléments combustibles.

1.2 Au relâchement des produits de fission dans l'élément.

1.3 Au calcul des contraintes exercées sur le matériau de gainage.

1.4 A la diffusion des produits de fission à travers le matériau de gainage.

Compte tenu notamment :

- du procédé de fabrication
- des conditions d'utilisation
- de l'irradiation

- de la corrosion
- du cyclage thermique
- de la température

2. Etudes théoriques

En fonction des résultats du point 1 précité :

- 2.1 Interprétation et corrélation des facteurs, paramètres et conditions intervenant dans l'évaluation du relâchement.
- 2.2 Mise en évidence des lacunes apparaissant dans ce domaine.
- 2.3 Essais de calcul destinés à déterminer l'importance du relâchement dans le cas d'éléments intègres et d'éléments présentant des endommagements typiques.
- 2.4 Définition des essais à réaliser pour combler les lacunes restantes et différenciation de ceux-ci selon qu'ils doivent être exécutés sur éléments irradiés réels ou selon qu'ils peuvent être réalisés sur modèles réduits ou capsules irradiées à l'appui de lois de similitude justifiées.

3. Elaboration d'un programme d'études expérimentales

A partir des résultats du point 2.4 qui précède :

- 3.1 Etablissement du programme d'essais.
- 3.2 Suggestions pour leur réalisation pratique.

Suivant essentiellement le programme précité, l'étude a porté en particulier, en plus des éléments MTR, sur les éléments combustibles des réacteurs de puissance en exploitation en Italie (Latina, Garigliano, Trino).

Les travaux afférents au programme ci-dessus ont été effectués par le personnel de la Montecatini-Edison (ainsi que celui de la firme associée SORIN), du C.N.E.N. et de l'EURATOM suivant les

tâches confiées à chaque organisme (*).

Le paragraphe 3 ci-dessous présente une synthèse des documents préparés qui ne constituent, comme nous l'avons déjà dit, qu'une étude préliminaire de certains aspects du problème général que posent les relâchements d'activité par un emballage destiné au transport d'éléments combustibles irradiés.

3. RESUME-GUIDE, LIMITES ET LACUNES

3.1 Généralités

Conformément au programme d'étude définitif, délimité au paragraphe 2 qui précède, les différentes parties du présent rapport ont été présentées sous forme de documents séparés dans le but d'en rendre la rédaction et la consultation plus aisées.

On y esquisse rapidement chaque partie en motivant son contenu aux fins de l'objet du contrat.

Afin de guider le lecteur, qu'intéresse avant tout les problèmes pratiques du transport, les parties de la présente étude qui offrent le plus d'intérêt en la matière sont indiquées d'une façon assez détaillée.

La table des matières des différentes parties comprenant les titres, auteurs et organismes auxquels ils appartiennent, est reproduite à l'Annexe B.

La présente partie I contient également des propositions ayant trait à des travaux ultérieurs. Il a paru utile, en effet, de rassembler dans une partie introductive unique, d'une lecture plus commode, également quelques conclusions intéressantes.

Les paragraphes suivants reprennent les résumés-guide des différentes parties et mettent en évidence les limites et les lacunes rencontrées.

(*) Les indications correspondantes figurent, dans la table des matières détaillée des parties successives du rapport final, à l'Annexe B et au résumé (par. 3).

3.2 Partie II: Détermination des caractéristiques des éléments combustibles et des conditions d'exploitation en pile par V. Baffigo (SORIN) et S. Baldetti (Montecatini-Edison)

Dans la partie II on décrit, sur la base d'informations provenant directement de l'ENEL et de données recueillies dans la littérature, les éléments combustibles considérés dans la présente étude (MTR, Latina, Trino, Garigliano) ainsi que les paramètres d'exploitation qui peuvent être utiles pour l'évaluation des conditions existantes pour les éléments irradiés au moment du transport.

On a cherché, en particulier, à prendre en considération les données portant sur les caractéristiques géométriques des éléments (utiles à l'établissement de modèles d'éléments auxquels seront appliqués les calculs de relâchement); sur les propriétés physiques, mécaniques et métallurgiques des matières constituant, fissiles, de gainage, de support (qui peuvent servir à caractériser le comportement mécanique et sous l'effet de la corrosion et la diffusion des produits de fission); sur les méthodes de fabrication et d'assemblage (qui peuvent servir à caractériser la résistance mécanique, l'état métallurgique des constituants après assemblage, les tensions internes éventuelles, etc.); sur les conditions d'exploitation, en particulier la distribution des flux neutroniques (pour la détermination des puissances spécifiques et de l'accumulation locale des produits de fission), la distribution de température dans les éléments (présentant un intérêt pour la diffusion des produits de fission au cours de l'exploitation et les altérations métallurgiques), ainsi que les données sur le cycle de combustible et sur le burn-up (destinées à fournir des renseignements sur la concentration des produits de fission en fin de cycle), la nature, la pureté et la vitesse du fluide réfrigérant (données présentant un intérêt pour l'étude de la corrosion et de l'érosion du cladding).

Cette seconde partie contient également, en particulier, des données statistiques provenant de réacteurs américains et britanniques, concernant l'état du combustible en fin de cycle et plus particulièrement la rupture, la corrosion, etc.

On peut se reporter en particulier au par. 2.6 (p. 7) pour les éléments du type Latina, au par. 3.6 (p. 15) pour les éléments enrobés dans du Zircaloy 2 et au par. 4.6 (p. 25) pour les éléments enrobés dans de l'acier inoxydable. Par contre, d'autres données expérimentales relatives aux contraintes sur le gainage, par la déformation de l'uranium métallique dans des éléments du type anglais figurent dans la partie IV (voir ci-dessous).

En conclusion de ce paragraphe, il y a lieu de noter que des difficultés se sont présentées quant à certaines données intéressantes. En ce qui concerne notamment les méthodes de fabrication et d'assemblage, on a eu recours à des descriptions portant sur

des réacteurs semblables, à défaut d'informations spécifiques sur les éléments combustibles des réacteurs de puissance exploités en Italie.

Les données concernant le gap ou volume libre qui existe à l'intérieur des barreaux de combustible des réacteurs Trino et Garigliano ont un caractère qualitatif et se prêtent mal à des évaluations de la pression des gaz de fission en fin de cycle (ou au début du transport). Rares sont, par ailleurs, les informations détaillées concernant l'historique thermique et nucléaire de chaque élément (distribution de la température dans l' UO_2 , distributions des flux et spectres neutroniques dans le combustible, burn-up effectifs et leur distribution, etc.).

Enfin, les statistiques sur l'état du combustible au moment du transport ou en fin de cycle sont encore rares, en ce qui concerne les réacteurs exploités en Italie. En fait, il apparaît qu'un seul transport a été effectué, en l'occurrence pour le réacteur de Latina [3]; une inspection intermédiaire a eu lieu pour le réacteur Garigliano et aucune intervention sur les éléments combustibles du réacteur Trino.

3.3 Partie III: Propriétés physico-mécaniques des matières fissiles pré- et post-irradiation, par V. Baffigo, G.L. d'Auria, V. Amato (SORIN)

Cette partie III comprend, sous forme de diagrammes et de tableaux, des données relatives aux variations des propriétés physico-mécaniques (caractéristiques thermiques en fonction de la température, dilatation thermique, propriétés mécaniques liées à la courbe efforts-allongements, dureté, résilience, fatigue, fluage, cyclage thermique et altérations dimensionnelles relatives, etc.) des matières fissiles (U métallique du type "adjusted" ou faiblement lié, alliage U-Al, UO_2 fritté) avant et après irradiation neutronique. Ces données présentent un intérêt évident pour les évaluations mécaniques dans l'accident de chute, notamment dans le cas Latina, et en ce qui concerne les prévisions de température maximale et conséquemment de tensions internes dans le cas de l'accident thermique.

La disposition des données d'un intérêt majeur dans la partie III est la suivante.

a) Uranium métallique

Des données exhaustives, provenant de trois sources diverses et concernant la chaleur spécifique de l'uranium métallique dans le champ de température de 100 à 800°C, figurent au tableau II (p. 2) et dans le graphique de la fig. 1 (p. 3) qui mettent en

évidence les discontinuités dues aux transformations de phase à 662°C ($\alpha \rightarrow \beta$) et à 774°C ($\beta \rightarrow \gamma$). La chaleur totale résultant des données de chaleur spécifique apparaît dans le fig. 2 (p.3) dans le même champ de température.

Des données sur la conductibilité thermique de l'uranium α (de 0 à 550°) et de l'uranium β (de 680 à 760°C) figurent respectivement au tableau III (p. 4) et au tableau IV (p. 4); la fig. 3 (p. 5) reproduit en diagramme l'indication de la conductibilité thermique (valeurs les plus probables de différentes sources) à l'intérieur d'un grand intervalle de température (de quelque -300° à environ $+900^{\circ}\text{C}$). Lors de l'utilisation de ces données pour des calculs thermiques de prévision, il y a lieu, cependant, de tenir constamment compte de l'effet des impuretés contenues, des méthodes de fabrication et de traitement thermique et mécanique, etc.

L'effet de l'irradiation sur la conductibilité thermique de l'uranium métallique est indiqué au par. 2.1.4 (p. 5) et dans le tableau V (p. 5): cet effet semble modeste (mais, d'autre part, les taux et les températures d'irradiation et de mesure auxquels on s'est limité le sont également); les données trouvées en la matière, surtout en ce qui concerne les conditions d'irradiation plus poussées, sont nettement insuffisantes.

La dilatation thermique de l'uranium métallique en fonction de la température (de 25 à 650°C) et des directions cristallographiques figure au par. 2.1.5 (p. 6), de même que les données moyennes pour de l'uranium polycristallin dépourvu de texture et que la dilatation volumétrique. Le même paragraphe contient des données moyennes pour l'uranium β et γ ainsi que des données sur les modifications des dimensions linéaires et volumiques au cours des passages de phase: ces modifications peuvent évidemment provoquer des tensions indésirables sur le gainage lorsqu'il y a élévation de la température au cours du transport qui s'ajoute aux causes dues à l'irradiation (croissance anisotrope, gonflement) que traite la partie IV. En ce qui concerne également les modifications de dimensions causées par la température, il y a lieu de tenir compte de l'influence des traitements thermiques et mécaniques subis par le matériel: des exemples en sont donnés dans la fig. 5 (p. 8) et le tableau VI (p. 8).

Le par. 2.1.10 (p. 11) contient des données portant sur les constantes élastiques (module de Young, compressibilité linéaire, rapport de Poisson, module de coupe) chaque fois que cela est possible en fonction des directions cristallographiques (pour l'uranium α), du cycle de travail (tableau XI, p. 12 et fig. 6, p. 13), de la température (de 20 à 690°C , tableau XII, p. 12 et fig. 7, p. 13).

Les rares données concernant l'effet de l'irradiation sur le module élastique figurent au par. 2.1.12 (p. 14).

Le par. 2.2 (p. 14) porte sur les caractéristiques mécaniques de l'uranium métallique, avant et après l'irradiation: ces données offrent un intérêt pour d'éventuelles prévisions de comportement dans le cas d'un incident mécanique. On y relève les données relatives aux essais de traction (charge de rupture, limite élastique 0,2 %, allongement en pourcentage) de la température ambiante à 500°C en fonction de la température de laminage (300 ou 600°C) et de recuit (600 ou 700°C) pour l'uranium métallique (tableau XVI, p. 18); des données sur l'influence des impuretés de C (de 60 à 1250 ppm) et des impuretés totales (de 260 à 1800 ppm) sur la charge de rupture et l'allongement en pourcentage (tableau XVII, p. 19); des données relatives à la charge de rupture, d'élasticité, d'allongement et de contraction en fonction du traitement thermique et mécanique (tableau XVIII, p. 19; tableau XIX, p. 20).

Après un aperçu du comportement mécanique pendant l'irradiation (par. 2.2.5, p. 23), qui ne présente qu'un faible intérêt pour les problèmes de transport, le par. 2.2.6 (p. 24) traite du comportement mécanique après irradiation en fonction du taux d'irradiation. Pour les essais à la température ambiante (et les irradiations à une température peu élevée), la fig. 14 (p. 24) met en évidence une augmentation de la limite d'élasticité et une diminution importante de l'allongement à la rupture (fragilisation ou mieux encore diminution de la ductilité) déjà dans le cas de taux d'irradiation relativement peu élevés.

L'effet de la température d'irradiation et de celle de l'essai est reproduit au tableau XXIII (p. 26) et commenté à la p. 25. Voir également la fig. 15 (p. 27) à ce sujet. L'effet des méthodes de fabrication et du traitement thermique et mécanique (précédant l'irradiation) sur les propriétés mécaniques de l'uranium irradié figure au tableau XXIV (p. 28). Les effets du traitement thermique qui suit l'irradiation présentent un intérêt particulier (tableau XXV, p. 29 et fig. 16, p. 30). La résilience (particulièrement intéressante en ce qui concerne les incidents mécaniques au cours du transport) est traitée au par. 2.2.7, p. 31; voir en particulier le tableau XXIV à la page 28 pour certaines données (rares) après irradiation.

Les données sur le fluage (creep) pour l'uranium métallique (avant l'irradiation) à une température élevée (cycles thermiques) figurent au tableau XXVII (p. 34); la dépendance des dimensions du grain à 400°C figure au tableau XXVIII (p. 35) et au tableau XXX (p. 37), tandis que le tableau XXIX (p. 36) contient de nombreuses

données en fonction des différents cycles technologiques de fabrication et de traitement. La vitesse de fluage pour l'uranium soumis à différents traitements et à différentes charges, à des températures de 100, 300 et 500°C, figure au tableau XXXI (p. 38) et la déformation qui en résulte, en fonction du temps, à des températures de 300 et 500°C, est représentée à la fig. 20 (p. 39).

Le fluage pendant l'irradiation est traité au par. 2.2.11 (p. 40) et après irradiation au par. 2.2.12 (p. 44): voir, par exemple, le tableau XXXIII (p. 44) pour les données sous une température allant jusqu'à 330°C.

A ce sujet, des données relatives aux éléments combustibles britanniques sont contenues dans le par. 2.2.13 (p. 45) en ce qui concerne le fluage et à l'Annexe A (p. 81) en ce qui concerne les autres propriétés mécaniques et thermiques intéressantes.

Les effets (portant le plus souvent sur les dimensions) du cyclage thermique présentent un certain intérêt parce qu'ils sont reliés (par similitude) aux effets analogues de l'irradiation (suivie de contrainte du gainage) plus que pour leur application effective au cas de transport: il est question de ces effets au par. 2.3 (de la page 47 à la page 63).

b) Alliage U-Al

Il existe peu de données relatives aux alliages U-Al et leur intérêt est également faible en ce qui concerne les problèmes de transport. Signalons les données sur la dilatation thermique linéaire de 20° à 500°C (toutefois avant l'irradiation) qui peuvent être éventuellement intéressantes pour le calcul des tensions internes au cours de l'incident thermique de transport (tableau XLI, p. 65) et les caractéristiques mécaniques (toujours avant l'irradiation) à la température ambiante (tableau XLII, p. 65) et à 150 et 300°C (tableau XLIV, p. 67). La stabilité des dimensions sous irradiation fait l'objet d'un bref commentaire au par. 3.2.2.5 (p. 68).

c) UO₂

Les caractéristiques mécaniques de l'UO₂ ne présentent pas un grand intérêt pour les problèmes de transport parce que, même dans le cas d'accidents, les tensions sont bien moins lourdes que pendant l'exploitation en pile et que, d'une façon générale, on ne demande pas à l'UO₂ de contribuer à l'intégrité de la barre.

Les données sur la conductibilité thermique sont extrêmement divergentes, notamment en raison des difficultés de mesure et de la diversité des matériaux (fig. 43, p. 73; fig. 44, p. 74; tableau XLVIII, p. 76; tableau XLIX, p. 77).

Les propriétés mécaniques (charge de rupture), en fonction de la porosité et de la dimension du grain, se trouvent à la fig. 45 (p. 75); le tableau L représente d'autres propriétés mécaniques sous température ambiante (voir p. 79).

Le par. 4.3 (p. 78) contient quelques aperçus sur les rares variations intéressantes après irradiation.

En conclusion de ce paragraphe, il y a lieu de remarquer, d'une façon générale, ce qui suit.

L'ensemble des données retracées porte sur un bon nombre de cas relatifs à l'uranium et à ses alliages suivant différents traitements thermiques.

Sur la base d'une comparaison des différentes valeurs, il est déjà possible de se faire une idée de l'évolution de nombre de grandeurs (surtout en ce qui concerne les caractéristiques mécaniques) en fonction du traitement thermique subi, de façon à pouvoir procéder à une estimation de ces valeurs même dans des conditions non soumises à l'essai, mais qui sont comprises entre des conditions expérimentées.

Par contre, les données portant sur l'uranium et ses alliages irradiés sont moins fréquentes et les preuves y relatives effectuées par plusieurs expérimentateurs sont plutôt rares.

3.4 Partie IV: Altérations des dimensions de l'uranium métallique par irradiation neutronique, par G.L. d'Auria, G. Szabo Miszenti (SORIN)

La partie IV traite du problème de la déformation et du gonflement de l'uranium métallique causé par l'irradiation neutronique dans des champs de température particuliers.

L'intérêt de ce problème est évident pour les éléments Latina, du fait que cette altération peut entraîner des contraintes anormales de la gaine (Magneox) et des prédispositions à la rupture en cours de transport, suivies d'un début de corrosion si le transport est effectué dans de l'eau stagnante [3].

Le gonflement pendant l'élévation de la température après irradiation et l'effet contrastant de la gaine comme "lien externe"

présentent un intérêt particulier pour l'incident thermique de transport. Les deux phénomènes sont donc traités dans le présent chapitre qui contient, par ailleurs, l'expérience pratique britannique portant sur des éléments réels.

La disposition des données présentant un intérêt majeur dans la partie IV est la suivante.

Dans l'introduction (de la page 1 à la page 5), on définit et on confronte les deux phénomènes d'accroissement anisotrope (anisotropic growth) et de gonflement (swelling) que présente l'uranium métallique sous irradiation, notamment en dessous et au-dessus de 400 - 500°C respectivement.

Un bref tableau synoptique des effets et des causes probables figure à la page 4 et à la page 5.

La section 1 (début à la page 9) traite du phénomène de l'accroissement anisotrope. A la page 11, on définit le paramètre d'accroissement G_1 en posant clairement les limites de la définition ainsi que la dépendance du paramètre du taux d'irradiation, de la température d'irradiation et des dimensions du grain.

Le tableau 2.1 (p. 13) contient certaines valeurs pour l'uranium traité différemment, dans le champ des basses températures (plus basses ou égales à la température ambiante).

Le phénomène de plissement superficiel, conséquence directe de l'accroissement anisotrope et qui présente un intérêt pour les contraintes localisées sur le cladding, est traité au par. 2.2 (p. 14): la fig. 2.2 (p. 16) représente le plissement observé (exprimé en tant que paramètre qualitatif) en fonction du taux et de la température d'irradiation; des données analogues figurent au tableau 2-II (p. 17).

La dépendance de l'accroissement de la texture du matériau polycristallin fait l'objet du paragraphe 2.3 (p. 13): dans le but de pouvoir établir des prévisions, on y définit des indices d'accroissement relevés grâce aux rayons X, des mesures de dilatation thermique ou des mesures de résistivité électrique; l'effet des travaux mécaniques qui altèrent la texture est également mis en évidence (fig. 2.3, p. 20; fig. 2.4, p. 21; fig. 2.5, p. 22; tableau 2.IV, p. 23; tableau 2.V, p. 24; fig. 2.6, p. 25; fig. 2.7, p. 26; tableaux 2.V et 2.VI, p. 27; fig. 2.8, p. 28; tableaux 2.VII et 2.VIII, p. 29).

L'apparente profusion de ces données ne doit pas donner à penser que des situations réelles peuvent toujours être interpolées à l'aide des données disponibles: au contraire, le nombre des paramètres qui régissent le phénomène et la faible connaissance numérique que nous en avons rendent problématiques des déductions ayant une certaine valeur pratique pour des cas particuliers.

C'est pourquoi, l'expérience concrète réalisée sur des éléments de type Calder Hall par. 2.4 (p. 30), fig. 2.9 et 2.10 (p. 31), tableau 2.IX (p. 32) et tableau 2.X (p. 33) présente un intérêt majeur. Le tableau 2.XI (p. 34) indique notamment les allongements observés sur des éléments combustibles Calder Hall (normalisés à un taux d'irradiation de 1000 MWj/t) et les figures 2.11 (p. 35) et 2.12 (p. 36) présentent de nombreux diagrammes sur les variations des dimensions jusqu'à 2000 MWj/t.

La tendance à l'allongement est contrariée par le gainage qui agit comme un lien, mais qui peut céder à son tour, entraînant des risques pour le relâchement de l'activité pendant le transport. L'effet de contrainte de tels liens est décrit au paragraphe 2.5 (p. 37) dans différentes situations de simulation du gainage (tableau 2.XII, p. 38).

La Section III (début p. 39) a trait au phénomène de gonflement.

Après une introduction (par. 3.1, p. 39-42) sur la nature du phénomène et les paramètres qui le caractérisent (taux de gonflement R), on esquisse, d'une façon générale, le développement du phénomène: diminution de la densité ou augmentation du volume en fonction du taux de combustion ou avec un taux de combustion unitaire, fig. 3.1, p. 42, fig. 3.2, p. 43 pour des températures modestes; fig. 3.3, p. 44 pour un large champ de température d'irradiation (100 - 500°C), fig. 3.4 p. 45 pour le champ de température allant jusqu'à 800°C et pour différentes situations (méthodes de fabrication, traitements thermique et mécanique, différents taux de combustion, etc.). Des données analogues figurent dans différents tableaux: gonflement à des différents taux de combustion (tableau 3.1, p. 47), pour différents développements thermiques pendant l'irradiation (tableau 3.II, p. 48), en fonction des données métallographiques (dimension du grain) et de la porosité (tableau 3.III, p. 49).

Les résultats dus à des expériences américaines étendues sont résumés dans le tableau 3.V (p. 54), 3.VI (pp. 57 et 58), 3.VII (p. 60) 3.VIII (p. 66), 3.IX (p. 67) et discutés dans le texte (p. 53 et suivantes). Les figures 3.5 et 3.6 (p. 62), 3.7 (p. 63), 3.8 et 3.9 (p. 64) complètent le cadre de ces expériences.

Dans ce cas également, la profusion apparente des données ne doit pas induire à l'optimisme en ce qui concerne une application possible à des cas particuliers intéressants et ce en raison de la variété des situations expérimentales.

Plus intéressants pour le cas Latina sont les résultats d'origine britannique sur l'uranium ajusté (gonflement en fonction de la température et du taux d'irradiation) dont il est question au paragraphe 3.3 (p. 69), à la fig. 3.10 (p. 71) et au tableau 3.XI (p. 70), et dont des représentations plus adéquates sont redonnées par les fig. 3.11 et 3.12 (p. 73). Toujours pour des éléments de type britannique, on cherche à extraire de la variété des données expérimentales quelques relations empiriques qui lient l'augmentation de volume au taux d'irradiation afin de pouvoir effectuer des évaluations approximatives (par. 3.4, p. 74).

Le par. 3.10 (p. 121-125, contient des notes portant sur le résultat des examens d'éléments du type britannique effectivement utilisés dans les réacteurs de Windscale et Calder Hall; les variations relatives aux densités sont rapportées au tableau 3.XXV (p. 125) et fig. 3.33 (p. 125).

L'effet de la composition de l'uranium sur l'accroissement fait l'objet d'une discussion au par. 3.5 (p. 77); des données afférentes figurent au tableau 3.XII (p. 78), fig. 3.14 (p. 79) et au tableau 3.XIII (p. 81).

L'effet sur le gonflement des liens qui existent pendant l'irradiation, effet qui présente le même intérêt que dans le cas de l'accroissement, est rapporté au tableau 3.IV (pp. 50 et 51 et T2), au paragraphe 3.7 (pp. 113-116), au tableau 3.XXI (p. 114) et à la fig. 3.6 (p. 62). Le cas des barres obtenues par coextrusion avec un gainage en Zircaloy 2 est examiné au par. 3.8 à la page 116 ainsi qu'à la fig. 3.30 à la p. 120.

Le cas des éléments tubulaires gainés en Zircaloy 2 fait l'objet du par. 3.9 à la p. 121 et des figures 3.31 à la p. 122 et 3.32 à la p. 123.

Des données sur le gonflement d'éléments Calder Hall (diminution de densité) sont fournies dans le tableau 3.XXV à la p. 125 et par la fig. 3.33 à la page 125.

Des traitements thermiques après irradiation peuvent entraîner le gonflement: c'est-à-dire qu'ils offrent un intérêt particulier pour l'incident thermique en cours de transport. L'argument est traité au par. 3.6 (p. 86), où l'on discute également de l'effet

des liens (gainage): voir notamment le tableau 3.XIV à la p. 88 3.XV à la p. 89, fig. 3.18 à la p. 90, tableau 3.XVI à la p. 92; fig. 3.19 et 3.20 à la p. 94 (diminution de densité en fonction du temps à une température allant jusqu'à 822°C); fig. 3.21 et 3.22 à la p. 95 (diminution de la densité après 30 min. à des températures variables allant jusqu'à 900°C); fig. 3.23 à la p. 97 (diminution de la densité à 618°C, jusqu'à 80 heures pour différents alliages et différents taux d'irradiation), fig. 3.24 à la p. 97 (même chose, à 740°C); fig. 3.28 à la p. 101 (effet combiné de traitements thermiques à impulsion, après irradiation, avec des traitements thermiques plus légers et prolongés), fig. 3.29 à la page 103 et tableau 3.XIX à la p. 104 (diminution de la densité en fonction du temps jusqu'à 96 heures, à 880°C).

Des données de source canadienne figurent à la p. 105 ainsi qu'au tableau 3.XX aux pages 107, 108, 109, 110, 111, 112.

En conclusion de ce paragraphe il y a lieu de remarquer, d'une manière générale, ce qui suit.

Les données fournies, tout en portant sur une vaste gamme de matériaux étudiés et sur des conditions d'irradiation ainsi que sur des traitements successifs de réchauffement à des températures variées et dans diverses conditions de confinement, souffrent de l'hétérogénéité de leur provenance et des différences dans les buts poursuivis et les moyens appliqués au cours de l'expérimentation. Dans l'ensemble, on possède un cadre suffisamment ample et clair du développement et de l'importance des phénomènes de déformation.

Toutefois, la difficulté particulière d'une corrélation des différents effets des paramètres déterminant ces phénomènes ne permet pas une prévision détaillée et exacte du comportement de matériaux particuliers dans des conditions déterminées, même si elles sont peu éloignées des cas spécifiques décrits. Pour cette raison, il n'est pas toujours possible d'obtenir des réponses détaillées et exhaustives à tous les problèmes qui peuvent se présenter dans la pratique et relatifs à un type déterminé d'élément combustible irradié pendant le transport.

3.5 Partie V: Propriétés mécaniques de matériaux de gainage et de support et effets de l'irradiation, par M. Castagna (SORIN)

La Partie V comprend, sous forme de diagrammes et de tableaux, les données relatives à des variations des propriétés mécaniques (courbe sollicitations-déformations et grandeurs qui y sont liées; dureté; résilience et fragilité; creep et temps de rupture; suppression du dommage par traitements thermiques, etc.) matériaux de

gainage et de support (acier inoxydable, alliages de zirconium, d'aluminium, de magnésium) avant et après irradiation neutronique et à différentes températures. Ces données sont d'un intérêt évident pour des évaluations mécaniques dans le cas de l'accident de chute, spécialement dans le cas où la partie prépondérante de la résistance n'est pas confiée à la matière fissile (réacteurs PWR et BWR). Une partie de ces données peut être utilisée pour le calcul de la rupture de gaine pour des éléments à UO_2 (par. 3.9, Partie IX).

La disposition des données offrant un intérêt majeur dans la Partie V est la suivante.

Les principaux facteurs influençant le comportement et la résistance aux contraintes mécaniques d'un matériau irradié peuvent être résumés de la façon suivante :

- a) flux neutronique
- b) température d'irradiation
- c) température à laquelle se produit la contrainte
- d) conditions thermiques après irradiation
- e) type de contrainte (vitesse, direction longitudinale ou transversale, etc.)
- f) géométrie et histoire de l'échantillon avant l'irradiation.

Pour les différents matériaux considérés, on donne les indications suivantes :

A) Aciers inoxydables austénitiques :

- Les effets combinés de certains des facteurs sus-indiqués sont groupés et schématisés dans le tableau VII à la p. 27 et par la fig. 17 à la p. 26.
- Les propriétés mécaniques statiques avant et après irradiation d'une série d'aciers inoxydables sont confrontées dans le tableau I à la p. 7.
- Des données sur la dépendance des propriétés mécaniques du flux neutronique sont fournies par la figure 4 à la p. 8 et dans le tableau II à la p. 9.
- Des résultats d'essais de résilience Charpy - V pour l'acier inoxydable AISI 347 sont fournis par la figure 12 à la page 18 (irradiation à $5.75 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2 > 1 \text{ MeV}$).
- L'influence combinée des facteurs a) et f) sur les propriétés

mécaniques statiques des aciers AISI 304 et 348 est donnée par les figures 5 et 6 à la p. 10; 7 et 8 à la p. 11; 9 à la p. 12 et dans le tableau III aux pp. 13 et 14; des résultats de mesures dans des conditions analogues, effectuées dans des éprouvettes de traction entaillées et qui peuvent être utilisés comme mesure relative de la capacité que possède le matériau pour résister à la propagation rapide de craquelures, sont fournis par les figures 10 et 11 à la p. 17.

- L'effet de la température d'irradiation sur les propriétés mécaniques du AISI 304 est fourni par les figures 13 et 14 à la p. 22, 15 à la p. 23 et 16 à la p. 26 pour différentes températures de contrainte.
- Toujours pour l'acier AISI 304, les tableaux IV aux pp. 19 et 20 et V à la p. 21 contiennent des données très détaillées, avant et après irradiation, sur les charges unitaires d'élasticité et de rupture et sur les allongements à la rupture dans différentes conditions: températures d'irradiation entre 175 et 704°C, températures d'essai entre 20 et 843°C et vitesse de déformation entre 0.002 et 2.0 min⁻¹.
- De nombreuses données concernant l'influence du travail mécanique à froid avant l'irradiation sur les propriétés mécaniques des aciers inoxydables irradiés sont contenues dans les tableaux III aux pp. 13 et 14 et VI à la p. 24 et représentées, en fonction du flux, par les figures 5 et 6 à la p. 10, 7 à la p. 11 et 8 à la p. 12.
- Des résultats d'essais sollicitations-ruptures effectués à 700°C, 760°C et 820°C dans un réacteur à charge constante sur des échantillons tubulaires en acier AISI 304 (particulièrement significatifs pour l'évaluation du comportement et de la résistance des matériaux de gainage pour éléments combustibles) sont représentés par les fig. 19 à la p. 29 et 20 à la p. 30. Des données de mesure analogues après irradiation sont regroupées sous la fig. 21 à la p. 31.

B) Zircaloy 2

- Les propriétés mécaniques à la température ambiante du Zircaloy 2 irradié à 80°C et avec un flux maximal de $5.6 \cdot 10^{19}$ n/cm² (> 1 MeV), sont comparées avec des valeurs avant irradiation au tableau VIII à la p. 34 (matériaux se trouvant en état: d'extrusion, d'extrusion et de recuit, d'extrusion travaillée à froid, d'extrusion travaillée à froid et recuite). D'autres données relatives au matériau irradié et expérimenté dans des conditions se rapprochant au maximum des conditions réelles auxquelles la gaine des éléments

combustibles est soumise ou peut être soumise, sont présentées dans le tableau IX à la p. 37 et dans les figures A et B de l'Annexe (figurant en supplément à la Partie V).

- Les figures 28 à la p. 43, 29 à la p. 44, 30 à la p. 45, 31 à la p. 46 et 32 à la p. 47, représentent l'évolution des propriétés mécaniques statiques du matériel irradié (à 280°C et à un flux de $2.7.10^{20}$ n/cm² rapides), puis recuit jusqu'à une température de 700°C: le matériau pris en considération se trouvait respectivement à l'état recuit, écrouit de 13 % et écrouit de 25 %, puis revenu. Des données analogues, mais moins utiles dans le cas particulier étant donné qu'elles concernent un matériau irradié et soumis à des effets de température ambiante, figurent au tableau X à la p. 48.
- Certains résultats portant sur l'influence de la température d'irradiation et de l'orientation des échantillons, par rapport à la direction de laminage sur les propriétés mécaniques après irradiation sous différents flux, sont représentés par les fig. 33 et 34 à la p. 49: les essais ont malheureusement été effectués à la température ambiante.
- Il existe également quelques résultats d'essais sollicitation-rupture pour le Zircaloy 2, essais qui ont été effectués dans un réacteur à charge constante sur des échantillons tubulaires analogues à des bouts de gaine (fig. 35, p. 50): les essais ont été effectués à 370°C et 480°C.
- Les résultats des essais de creep dans le réacteur sur le Zircaloy 2 avec accroissement de 20 % sont comparés à la fig. 36, p. 51 avec des données analogues obtenues hors pile: les essais ont été effectués à 320°C et sous une contrainte de 35.000 psi.
- Certaines données relatives au comportement au choc du Zircaloy 2 irradié à une température relativement basse (80°C) sont indiquées à la fig. 23, p. 35: le flux d'irradiation est inférieur à celui auquel la gaine a été soumise au terme de l'utilisation de l'élément, mais ces résultats peuvent servir à titre de comparaison, d'autant plus que les essais ont été effectués sur le matériau dans différentes conditions: extrudé, extrudé et recuit, extrudé et travaillé à froid, extrudé et travaillé à froid et recuit.

C) Aluminium et ses alliages

L'intérêt en ce qui concerne la résistance mécanique dans le cas d'incidents de transport est assez limité dans le cas de

d'aluminium et de ses alliages (éléments MTR). Les propriétés mécaniques après irradiation à hauts flux sont réunies dans le tableau XI à la p. 54. Il y a lieu de relever, toutefois, l'importance de la température sur les propriétés mécaniques, étant donné la température de fusion plutôt basse, et la température de transport dans l'air en convection naturelle qui est plutôt élevée pour les éléments MTR. Le tableau XIII à la p. 57 représente la dépendance des propriétés mécaniques (charge de rupture, limite d'élasticité, allongement en pourcentage) pour différents alliages d'aluminium (non irradiés) jusqu'à la température de 370°C.

D) Magnox

On n'a trouvé que très peu de données en ce qui concerne les propriétés mécaniques des alliages de Magnox après irradiation. Le tableau XIV à la p. 58 représente quelques données d'essais de traction à 20 et à 100°C sur du Magnox irradié (à 40-50°C à 10^{20} n/cm²) et non irradié.

En conclusion de ce paragraphe, il y a lieu d'observer ce qui suit à propos des lacunes relatives aux données bibliographiques.

Pour tous les matériaux pris en considération, les données sur la résistance au creep après irradiation (en particulier pour des flux autour de ou supérieurs à 10^{20} n/cm²) demeurent insuffisantes.

On dispose de quelques résultats, pour certains aciers inoxydables et pour le Zircaloy 2, à la suite d'essais de creep dans le réacteur à différentes températures, mais on ne dispose pas de données relatives à des essais analogues effectués sur des alliages d'aluminium et des alliages de Magnox irradié ou en cours d'irradiation.

Si l'on tient compte, par ailleurs, que la géométrie des échantillons peut souvent influencer de façon déterminante les résultats, il n'est pas toujours possible d'exploiter les données obtenues sur des échantillons plus ou moins normalisés pour les extrapoler au cas des tubes ou des bouts cylindriques.

Finalement, dans le cas du Zircaloy 2 et surtout de l'aluminium et du Magnox, les données portant sur les propriétés mécaniques à des températures supérieures à 200°C après irradiation à des températures élevées, sont généralement rares et parfois apparemment contradictoires.

3.6 Partie VI : Diffusion des produits de fission dans le matériau fissile, par V. Baffigo et V. Amato (SORIN)

La partie VI contient des données sur la diffusion des produits de fission dans le matériau fissile, données qui présentent un intérêt majeur pour les calculs de relâchement (voir par. 3.8 et par. 3.9 ci-dessous).

Pour l' UO_2 , les données de littérature abondent, mais elles sont assez divergentes tant en raison des difficultés expérimentales (mesure et distribution de la température, phénomènes superficiels, etc) qu'en raison de la difficulté à caractériser les pastilles (stoéchiométrie, traitements thermiques, etc).

La fig. 1 à la p. 7 montre, en particulier, l'évolution du relâchement pour Xe^{133} , en fonction de la granulométrie de la poudre de départ. La fig. 2 à la p. 8 constitue un exemple de la fonction linéaire du relâchement intégré de la racine carrée du temps de permanence à la température constante (voir le rapport 1 à la p. 3). La fig. 3 à la p. 9 (qui se trouve également dans la Partie IX) contient, d'une façon synoptique, les données sur les coefficients de diffusion en fonction de la température, pour Xe^{133} et Kr^{85} , et pour différentes caractérisations du matériau.

La dispersion des données et les limites du rapport d'Arrhenius $D = D_0 e^{-Q/RT}$ (cité p. 4, Partie VII) sont évidentes. Toutefois, on propose en moyenne pour les coefficients de diffusion D les deux relations de la température absolue T :

$$D_{\text{Kr}^{85}} = 8.1 \cdot 10^{-7} e^{-\frac{67}{RT}} \quad \text{cm}^2/\text{sec}$$

et

$$D_{\text{Xe}^{133}} = 7.8 \cdot 10^{-6} e^{-\frac{76}{RT}} \quad \text{cm}^2/\text{sec}$$

RT étant exprimé en kilocalories par volume.

Des données analogues sont fournies par la fig. 8 à la p. 14 toujours pour Xe^{133} et Kr^{85} (de même que pour He à titre de comparaison) : les valeurs numériques citées sont toutefois assez différentes : $Q_{\text{Kr}^{85}} = 58,5$ et $30,0$; et $Q_{\text{Xe}^{133}} = 45,0$ kilocalories par volume (au lieu de 67 et 76 dans chaque cas).

Ces relations ne peuvent, par conséquent, être utilisées que

pour une déduction des relâchements très approximative.

La fig. 4 à la p. 10 montre que, par contre, le relâchement ne dépend pas beaucoup des dimensions des fragments ou des pastilles frittées. Le relâchement est plutôt, comme nous l'avons déjà vu à la figure 1 p. 7, fonction de la superficie spécifique, qui est liée au "rayon" moyen des poudres de départ. Le coefficient de diffusion apparent D' qui englobe ce paramètre est représenté à la fig. 6 p. 12 pour le Xe, en fonction de la température.

La fig. 7 p. 13 montre le degré de validité des calculs de relâchement pour le Kr^{85} comparés avec les résultats expérimentaux : bien qu'à première vue la corrélation semble discrète, il y a lieu de noter que les tables de logarithmes présentent parfois des divergences pour un ordre de grandeur.

Pour l' UO_2 , le phénomène du relâchement sous irradiation aux températures d'exploitation du réacteur revêt une importance particulière, étant donné que c'est au cours de cette phase que se forme, dans l'interstice entre l' UO_2 et la gaine, la pression due à l'échappement des produits volatils² admise au chapitre IX comme cause principale de l'éclatement de la gaine (en effet, on peut considérer comme nul le relâchement ultérieur aux températures de l'accident thermique, relâchement qui est relativement modeste et certainement inférieur à 1000 °C).

En ce qui concerne ce problème, il semble difficile d'extrapoler au cas qui nous intéresse les données déterminées qui portent sur des distributions de température non identiques. La question du relâchement des produits de fission pendant l'exploitation du réacteur est traitée, par ailleurs, à la partie IX.

Des données relatives aux burn-up élevés correspondants en fin de cycle font également défaut.

Les données relatives à l'uranium métal sont peu nombreuses en raison, évidemment, du moindre intérêt accordé à ce phénomène dans les réacteurs à gaz (faibles températures d'exploitation, autres phénomènes sujet de préoccupations tels que le gonflement). Cependant, même les quelques données disponibles présentent, dans certains cas, de nombreuses divergences et ne sont donc que difficilement utilisables.

C'est ce qui ressort clairement (même si l'on ne considère que le seul Xe ou Kr) du tableau III, p. 18 et 19 qui contient une synthèse des valeurs du coefficient de diffusion à diverses températures et de l'énergie d'activation Q qui en est déduite (Q devrait représenter des valeurs constantes pour chacun des deux nucléides diffusants).

Les données utilisables relatives à l'alliage U Al étant pratiquement inexistantes, le sujet ne figure pas dans la Partie VI. Les calculs relatifs à l'élément MTR (Partie VIII) on dû, par conséquent, admettre le cas le plus défavorable d'un relâchement subit des produits de fission en provenance d'inclusions de composé inter-métallique U Al dans la matrice de Al.

3.7 Partie VII : Diffusion des produits de fission dans le matériau de gainage, par F. Pieragostini (SORIN)

La Partie VII étudie les coefficients de diffusion relatifs à des éléments de fission dans des matrices de Al, Magnox, Zircaloy et acier inoxydable. L'intérêt porte essentiellement sur des gainages en aluminium et en Magnox, afin de pouvoir appliquer les calculs dont il est question dans la Partie VIII à des cas concrets. Pour le Zircaloy et l'acier inoxydable, les données afférentes peuvent servir, en premier lieu, à vérifier l'hypothèse tacitement admise dans la Partie IX, à savoir que le relâchement des éléments PWR et BWR est dû essentiellement à la rupture du gainage et non à la diffusion à travers le revêtement.

La littérature présente, toutefois, de nombreuses lacunes qui n'ont pas permis de se limiter aux éléments (tels que Ba, Br, Ce, Cs, I, Kr, Nb, Pm, Ru, Sr, Te, Xe, Y, Zn, Zr, etc.) ni aux matrices directement intéressées : on a, de ce fait, cherché à recueillir systématiquement des données concernant également d'autres éléments et matrices en essayant de les interpoler aux cas d'intérêt. Cette interpolation a eu lieu, en effet, (au moins dans un cas) à partir de relations semi-empiriques en vue d'obtenir un ordre de grandeur du coefficient de diffusion du Xe dans l'aluminium (cas MTR).

Ci-dessous une brève description du contenu de la Partie VII :

Le par. 2 (p. 1) étudie l'aluminium en tant que matrice de diffusion. La perméabilité au Xe semble être négligeable jusqu'à une température de 473 °C ; d'autres données relatives au relâchement du Xe et du Kr par fusion d'éléments MTR (tableau 1, p. 2) ne semblent pas pouvoir être utilisées directement.

Dans le cas de l'acier inoxydable, (par. 3, p. 3) la migration du Xe ne semble pas être non plus significative, jusqu'à une température de 650 °C. Des alliages analogues font l'objet d'une étude jusqu'à 1200 °C et l'on fournit des données de diffusion

pour le Xe (tableau II, p. 6).

Les données portant sur le Magnox et le Zircaloy sont très rares ou pratiquement inexistantes.

Le tableau III aux pp. 8 et 9 contient les données numériques recueillies dans les matrices concernées ou dans des matrices similaires.

Il a paru utile, par conséquent, de recourir à des formules semi-empiriques qui mettent en relation des paramètres de diffusion avec le volume atomique ou ionique de l'élément diffusant, dans le but d'interpoler (ou d'extrapoler) à partir des données existantes. Cette procédure est appliquée au paragraphe 6 (p. 4) pour l'estimation à partir des données existantes (tableau II, p. 6) du coefficient de diffusion du Xe dans l'Al à des températures de 300, 600 et 650 °C. On ne dispose pas, toutefois, de données expérimentales pouvant confirmer les déductions contenues dans les trois dernières lignes du tableau II, p. 6.

La nécessité d'entreprendre des mesures ultérieures ressort clairement de ce qui suit au paragraphe 4 ainsi qu'à l'annexe C qui formule des propositions concrètes.

3.8 Partie VIII : Essais de calcul du relâchement des produits de fission par des éléments du type MTR et Latina, par A. Ascari (SORIN)

La Partie VIII se propose d'élaborer des calculs de diffusion pour des éléments idéalisés, représentatifs des éléments MTR et Latina. L'élément MTR, idéalisé notamment grâce à une géométrie plane infinie à trois couches superposées (les deux couches extérieures ainsi que la couche interne étant en Al), est chargé uniformément de produits de fission (hypothèse d'un relâchement immédiat U-Al). L'élément Latina est idéalisé grâce à une géométrie cylindrique infinie à deux zones, dont une, centrale, est constituée par de l'uranium métallique dans lequel les produits de fission sont distribués initialement selon une courbe d'auto-absorption (et, en alternance, de manière uniforme, à titre de comparaison) et dont l'autre, périphérique, est constituée par du Magnox. Afin de simplifier et en partant de l'hypothèse la plus défavorable, on a fait abstraction des obstacles qu'opposent à la fuite des produits de fission les ailettes qui entourent le gainage.

Dans l'impossibilité d'effectuer des calculs sur des éléments endommagés par des ruptures locales du gainage (craquelures, corrosions locales, etc.), on a pris pour hypothèse une corrosion

uniforme, sur la base d'épaisseurs constantes du gainage, à partir de 0 (cas extrême) au maximum (cas de non-endommagement). La donnée relative à l'épaisseur 0 (bien qu'irréelle du fait qu'elle ne tient pas compte des effets de corrosion) peut servir à évaluer la part de relâchement provenant de zones limitées et complètement nues.

A l'origine, on espérait pouvoir reporter les résultats du calcul sous forme de courbes qui exprimeraient les fractions du relâchement (par rapport au contenu initial) en fonction du temps et à des températures différentes allant jusqu'à environ 800 °C, (notamment : relâchement horaire, relâchement après une semaine, etc.) pour les produits de fission qui nous intéressent.

A la suite d'une analyse de la littérature (Partie VII) force a été de constater que ces applications numériques rencontrent de nombreux obstacles en raison de la connaissance insuffisante des coefficients de diffusion D.

Les calculs ont donc été effectués pour l'élément MTR (intègre et sans gainage) en fonction de D, de façon à permettre à l'avenir la lecture immédiate du relâchement dès qu'on connaît les coefficients D pour les différents éléments dans la matrice afférente.

Cette méthode n'a pas pu être appliquée à l'élément Latina, pour lequel les coefficients de diffusion (incertains ou inconnus) sont au nombre de deux.

Les données analytiques et numériques présentant un intérêt majeur figurent ci-dessous :

a) résultats analytiques (par. 3, p. 5)

a1) Élément MTR gainé

La fraction dégagée en fonction du temps, du coefficient de diffusion et de l'épaisseur de la partie active est exprimée par le rapport 21 à la p. 5 ; l'expression 24 à la p. 6 constitue une approximation et vaut grossièrement pour des "petits" temps et pour des "petits" coefficients de diffusion (conditions formulées d'une manière plus rigoureuse au par. 4, p.9).

a2) Élément MTR sans gainage

Les expressions correspondantes se trouvent à la p. 6 (relations 21' et 24').

a3) Élément Latina gainé

La solution exacte fait l'objet du par. A2, p. 23, mais elle entraîne des complications d'ordre analytique importantes si on ne l'applique qu'à un cas général. Une solution approximative (approximations semblables au cas a1) est fournie par les relations 50 à

la p. 7. La distribution initiale des produits de fission tient compte de l'auto-absorption par le flux neutronique. La p. 7 indique également la solution 51 dans le cas d'une distribution initiale uniforme.

a4) Élément Latina sans gainage

La solution analytique est exprimée de manière exacte par la relation 59 à la p. 8 et de manière approximative (approximations analogues au cas a1)) par la relation 61 à la p. 8. Ces solutions tiennent compte de l'auto-absorption. Dans le cas d'une distribution initiale uniforme, voir respectivement les solutions exactes au par. 60 à la p. 8 et approximatives au par. 62, également p. 8.

b) Résultats numériques et graphiques

Quelques-unes des solutions dont il est question plus haut ont été présentées sous forme numérique et reportées en graphiques afin de permettre une représentation des évolutions et des ordres de grandeur.

La fig. 1 (p. 41) présente, sous forme de graphique, le relâchement par fraction après des temps de 1, 2, 3, 6, 12, 24 et 168 heures, en fonction du coefficient de diffusion pour des éléments MTR gainés et intègres.

La fig. 2 (p. 42) exprime le relâchement, en fonction du temps, du coefficient de diffusion et de l'épaisseur de la partie active, pour des éléments de type MTR.

Les fig. 3 (p. 43) et 4 (p. 44) donnent des détails sur la même partie dans les zones de faibles relâchements qui présentent, en général, quelque intérêt.

La fig. 5 (p. 45) compare les relâchements provenant d'éléments MTR non gainés et gainés.

Finalement, la fig. 6 (p. 46) montre le relâchement, après une heure et après une semaine, d'éléments MTR non gainés, en fonction du coefficient de diffusion.

Le tableau p. 14 (dont est tirée la fig. 6) comporte des données intermédiaires (relâchements après 2, 3, 6, 12 et 24 heures).

En conclusion de ce paragraphe, il convient d'attirer l'attention sur la limitation intrinsèque des résultats présentés, due à ce que la diffusion homogène ne constitue pas l'unique mécanisme entraînant le relâchement : d'autres mécanismes peuvent également être mentionnés, notamment la diffusion à travers des voies préférentielles (bords des grains) ou la fuite à travers des porosités ou des microcraquelures. Ces cas peuvent difficilement être soumis à des calculs offrant un certain degré de validité et ils n'ont donc pas été retenus pour la présente approximation.

3.9 Partie IX : Essais de calcul de l'importance du relâchement des produits de fission dû à l'éclatement du gainage, d'éléments de type PWR et BWR. Par A. Ferreli et R. Crostini (C.N.E.N. - Division Sécurité et Contrôles)

La partie IX contient une analyse préliminaire pour le calcul de la pression d'éclatement du gainage et de l'activité relâchée par des éléments PWR et BWR.

Elle contient également les critères de calcul de la quantité des produits de fission qui se forment dans le combustible en fonction de l'irradiation et du temps de refroidissement (par. 2 - pages 2 à 5).

On passe ensuite au calcul des pourcentages des gaz de fission relâchés par l' UO_2 et qui se rassemblent dans le volume libre de l'élément (par. 3 - pages 6 à 15).

Une fois connue la quantité des gaz compris dans le volume libéré, on propose une formule pour le calcul de la pression interne dans l'élément en fonction de la température (par. 4 - pages 15 à 16).

Suivent quelques considérations sur le calcul des tensions dans le matériau de gainage et sur les vérifications nécessaires de la résistance (par. 5 - pages 16 à 17 et par. 6 - pages 17 à 19).

Cette partie contient, par ailleurs, une évaluation des relâchements d'activité après éclatement du gainage, limitée aux isotopes retenus comme étant plus significatifs du point de vue radiologique pour le type d'éléments considérés (par. 7 - pages 19 - 26).

Finalement, les conclusions qui peuvent être tirées de l'étude préliminaire ci-dessus proposent, après avoir mis en évidence les limites de validité des calculs pouvant être effectuées sur la base des connaissances actuelles du phénomène, certains essais qui permettraient d'obtenir des données expérimentales en vue d'une évaluation plus réaliste du relâchement (par. 8 - pages 27 à 29).

En conclusion, cette partie contient également la bibliographie des travaux (essentiellement expérimentaux) qui ont été effectués aux USA et sur la base desquels la présente partie a été élaborée.

Toutefois, il y a lieu de souligner que des informations ultérieures figurent déjà dans la littérature courante et que des programmes expérimentaux progressent continuellement en vue de définir plus clairement les relâchements d'activité. Un plus grand nombre d'informations pourra donc être disponible dans un très proche avenir, informations qui permettront de procéder à une évaluation plus précise du phénomène.

4. SUGGESTIONS D'ORDRE GENERAL CONCERNANT DES TRAVAUX ULTERIEURS DE RECHERCHE

Les études et recherches susceptibles, en principe et d'un point de vue général, de combler au moins certaines parties des lacunes rencontrées dans l'étude relative au présent contrat, peuvent être divisées en trois groupes.

4.1 Améliorations des résultats calculés

Les résultats calculés pourraient être améliorés (et dans certains cas rendus possibles et significatifs) grâce à des études et des recherches fondamentales en vue d'obtenir des données permettant les calculs (lorsqu'il n'est pas possible de les trouver dans la littérature) ou encore en améliorant les méthodes de calcul et les hypothèses de base.

Ainsi qu'on l'a vu dans la Partie VII (et au par. 3.7 précédent), presque toutes les données relatives, notamment, au coefficient de diffusion des produits de fission significatifs dans les matériaux d'intérêt (Al et Magnox) et celles concernant leur dépendance de la température font défaut ainsi que, par ailleurs, les données relatives à la résistance mécanique et au fluage de matériaux de gainage aux températures susceptibles d'intérêt après irradiation.

Les méthodes de calcul peuvent notamment être perfectionnées sur le plan de la méthodologie analytique ou encore en introduisant des conditions plus proches de la réalité, afin d'évaluer également les effets de la corrosion sur le relâchement et en abandonnant les schémas assez simplifiés adoptés au moment où le problème a été abordé.

Même si, à première vue, les recherches possibles envisagées sous le présent point 4.1 ne paraissent pas aboutir dans l'immédiat à des résultats pratiques, elles peuvent, toutefois, être recommandées parce qu'elles pourraient contribuer (à défaut de données onéreuses portant sur des expériences intégrales) à la justification, du point de vue réglementaire, des projets d'emballage qui doivent être soumis à approbation (1). Ces études pourraient, par ailleurs, être utiles à la recherche d'une interprétation des données d'expériences intégrales (certainement rares) qui seraient rendues disponibles, afin de les extrapoler à d'autres situations et d'accroître la confiance dans ces calculs dans des cas analogues.

(1) Il convient de mentionner que la réglementation de l'AIEA prévoit la possibilité de justifier par des calculs (et non pas nécessairement par des essais expérimentaux) les approbations portant sur les emballages de transport.

C'est pour cette raison qu'il nous semble utile, en dépit des difficultés mentionnées plus haut, de proposer à l'Annexe C (Proposition n° 1) certaines actions concrètes possibles en la matière.

Cette proposition porte notamment sur la détermination des coefficients de diffusion de certains produits de fission significatifs en aluminium et si possible en Magnox, sous différentes températures, ainsi que sur l'application des résultats au calcul du relâchement par des éléments combustibles MTR dans des conditions pouvant servir de modèle.

Une phase ultérieure de cette étude (non envisagée par la proposition), pourra porter sur les effets de l'irradiation sur le coefficient de diffusion. On sait que l'irradiation peut entraîner des défauts du réseau (notamment des trous) qui peuvent, à leur tour, favoriser la diffusion. L'étude de ces effets, tout en compliquant la recherche du fait qu'elle implique des opérations sur du matériau radio-actif, rapprocherait toutefois l'expérience des conditions effectives dans lesquelles se trouve le gainage des éléments combustibles au cours du transport.

4.2 Expériences intégrales ou quasi intégrales sur le relâchement de gaz de fission

Au cas où l'on préférerait obtenir des prévisions quantitatives des relâchements basées sur des expériences intégrales au lieu de recourir aux mesures des coefficients de diffusion et aux résultats du calcul, les expériences du type suivant pourraient être proposées :

- 1) expériences de relâchement sur des éléments combustibles non endommagés ou sur des parties de ces éléments, à différentes températures,
- 2) expériences de relâchement sur des éléments combustibles endommagés (jusqu'à l'éclatement) ou sur des parties de ces éléments, à diverses températures.

Il y aurait lieu d'effectuer les expériences ci-dessus dans des conditions isothermes à différentes températures ou dans des conditions de transitoire thermique (rampe, etc.), sur des éléments entiers ou sur des parties significatives d'un élément non-endommagé ou qui présente un endommagement typique.

Les essais devraient être effectués sur un nombre suffisant d'échantillons, bien caractérisés quant à leur histoire (flux intégrés reçus, position dans le réacteur, températures d'exploitation, défauts visibles rencontrés, etc.), de façon à pouvoir en tirer des

corrélations intéressantes ou, du moins, vérifier les calculs pour un nombre de cas adéquats.

Les expériences pourraient être réalisées, par exemple, à l'aide de techniques semblables à celles bien connues du "post irradiation annealing" déjà appliquées dans le cas des pastilles **frittées**, tout en tenant compte des extrapolations nécessaires en raison des dimensions plus importantes de l'échantillon, de l'activité de ce dernier et de l'histoire nucléaire différente (période d'irradiation, période d'attente). Il faudrait, avant tout, disposer (en cellule) d'un thermostat ou d'un four aux dimensions suffisantes, réglables à une température d'environ 800 °C (même plus élevée, le cas échéant, lors d'essais destructifs de rupture, etc.) ainsi que d'un système d'assemblage, de séparation, de mesure et d'intégration des produits de fission ou, d'une manière générale, de l'activité relâchée.

Pour les produits volatils, il semble indiqué d'utiliser le système à carrier inerte ainsi que des pièges placés dans une autre zone blindée comportant un dispositif de détection par spectrométrie gamma. Une absorption plus ou moins sélective des produits volatils peut avoir lieu sur des parois froides disposées de façon adéquate.

Le contenu initial des produits de fission (qu'il faut connaître pour pouvoir déduire le relâchement fractionnaire) peut être déduit de différentes façons : sur la base du calcul, de l'histoire nucléaire (à condition que celle-ci soit suffisamment connue), de l'élément lui-même, d'analyses radiochimiques effectuées sur des parties de l'élément prélevées de façon adéquate ou, finalement de la fusion en cellule de parties de l'élément. La fusion totale de l'élément ne semble pas indiquée à cet effet. Il est évident que seule la première méthode a l'avantage de ne pas être destructive, bien qu'elle ait l'inconvénient de fournir des précisions moins sûres.

Les courbes du relâchement fractionnaire intégré, en fonction du temps à une température donnée, pourraient être comparées directement avec les résultats numériques du calcul (qui peuvent être obtenus après que l'on a effectué les mesures dont il est question au par. 4.1) dans le cas des combustibles MTR et Magnox (voir Partie VIII).

Pour l'élément MTR, il serait préférable de soumettre à l'expérience les plaques isolées au lieu de l'élément entier, ce qui permettrait d'obtenir les avantages suivants :

- un nombre plus élevé d'expériences possibles,
- une meilleure corrélation avec les défauts éventuels rencontrés sur chaque plaque,
- une meilleure corrélation avec les résultats du calcul,
- la possibilité de retrouver dans chaque cas, par addition, les

- données relatives à l'élément entier,
- des activités plus faibles à manipuler pour chaque expérience,
- un volume plus faible pour la caméra expérimentale (thermostat) en cellule.

Il ne devrait pas être difficile d'obtenir des éléments combustibles MTR ou des éléments analogues ayant été réellement utilisés en pile en vue de les soumettre à l'essai (qui peut être rendu non destructif si on limite les températures de façon appropriée).

Certains essais pourraient être effectués avec des éléments endommagés : avec des morceaux d'éléments, par exemple, ou encore avec des éléments ayant un revêtement incomplet (zone exposée, petits trous, égratignures profondes, etc.).

En ce qui concerne l'élément Magnox, l'expérience devra porter sur des barres complètes (longueur ~ 90 cm). Il sera intéressant de vérifier dans ce cas l'hypothèse admise dans le calcul (Partie VIII) du bon contact (liaison métallurgique) entre le combustible et le revêtement, et l'effet d'une éventuelle croissance de l'uranium au cours de l'annealing thermique post-irradiation. L'effet des défauts du gainage qui mettent le combustible en contact avec le milieu de transport (exemple : l'eau) devra cependant faire l'objet d'une étude expérimentale.

Quant aux éléments PWR et BWR, il semble intéressant de procéder à des essais d'éclatement de la gaine. On pourrait notamment utiliser des barres plus courtes que la longueur entière du coeur, barres qui sont disponibles dans certains réacteurs et qui permettent une expérimentation plus souple. Les résultats devraient être complétés par des analyses (métallographie, etc.) portant sur les gaines endommagées. L'interprétation demeurera incomplète en l'absence de données (même uniquement statistiques) sur la pression réelle exercée par les produits de fission recueillis dans l'écart entre l' UO_2 et le gainage pendant la vie de l'élément ainsi que sur leur composition réelle. Il sera probablement difficile d'effectuer ex-novo ces déterminations ("puncture test") sur un nombre significatif, du point de vue statistique, d'éléments dont on connaît l'histoire, pour lesquels il sera nécessaire d'effectuer des recherches bibliographiques ou d'avoir recours à des informations en provenance de programmes similaires réalisés ou en cours aux USA.

Il ne fait aucun doute que les expériences proposées sous le présent par. 4.2 sont importantes et onéreuses.

Leur réalisation semble, toutefois, utile (du moins dans certains cas typiques, là où existent déjà des appareillages de base), afin d'obtenir un minimum de données permettant une comparaison avec les résultats théoriques et de pouvoir se faire une idée des ordres de grandeur (voir Annexe C).

4.3 Expériences intégrales ou quasi intégrales de résistance mécanique à la suite de contraintes de choc

Ce type d'expériences semble être le plus complexe, compte tenu de la variété des paramètres en jeu (type d'élément et son histoire nucléaire, thermique, etc., type des emballages, des amortisseurs, etc., paramètres de la chute, etc.) pour lesquels il paraît difficile de concevoir un programme expérimental raisonnable concernant des éléments de combustible réel irradié.

On pourra éventuellement suggérer que les résultats des essais de chute, effectués ou en cours (dans le cadre d'autres contrats Euratom) ou d'autres essais effectués dans des conditions standards sur des modèles, soient interprétés sur la base de modèles de calcul utilisant, comme paramètres de résistance des matériaux, ceux qui auront été trouvés dans la littérature dans le cadre du présent contrat.

Il y a lieu d'attirer l'attention, en tout cas, sur les difficultés inhérentes à ces vérifications, difficultés qui sont dues en particulier à l'absence d'informations suffisantes relatives à l'histoire thermique et nucléaire des éléments irradiés à l'essai et au déroulement réel des contraintes de choc pendant les essais de chute.

Ces difficultés ont également été mises en évidence par des experts américains /47.

Pour les raisons invoquées ci-dessus, on n'a pas jugé utile d'approfondir ces possibilités ni de développer une technique de programme spécifique à cet effet.

4.4 Observations finales

Les propositions contenues aux par. 4.1 et 4.2 sont évidemment liées et complémentaires, bien qu'elles puissent être réalisées séparément.

La mesure des coefficients de diffusion proposée (par. 4.1) devrait nous permettre d'obtenir un calcul des ordres de grandeur du relâchement, non seulement dans le cas d'incidents isothermiques, mais également dans des conditions normales de transport pour l'élément MTR.

La proposition intégrale (par. 4.2) permet d'obtenir ces relâchements par voie expérimentale pour un nombre limité de cas (étant donné la complexité et le coût de l'expérience) et de mettre en relation les résultats expérimentaux avec les conditions réelles observées directement sur les éléments (état de la surface, endommagements, etc).

Une comparaison des deux résultats peut apporter des informations au moins sur la validité des calculs effectués ou, en tout cas, des suggestions permettant d'améliorer le mécanisme de ces calculs ainsi que des hypothèses physico-chimiques et métallurgiques admises comme base de calcul.

L'utilité pratique de ces vérifications est évidente lorsqu'on pense à l'impossibilité pratique de soumettre à des essais réels un nombre adéquat d'éléments combustibles irradiés contenus dans leur propre emballage de transport.

Bibliographie

- /17 Regulations for the safe transport of radioactive materials,
Safety series n° 6, IAEA, Vienne 1961.
- /27 Regulations for the safe transport of radioactive materials,
Safety Series n° 6, IAEA, Vienne 1964, édition révisée.
- /37 Transport of irradiated fuel from Latina to Windscale,
Atom n° 113, mars 1966, pp. 68 - 76.
- /47 L.L. Zahn, C.L. Brown, J.W. Langhaar, "Transportation of
radioactive materials" in Reactor Technology,
Selected Reviews, 1965, USAEC Report, TID 8541, janvier 1966,
pp. 268 - 270.

Annexe A

Annexe technique et programme de travail d'après la première version (20 octobre 1965) : doc. EUR/C/5329/65 e

A1 - Résumé de l'annexe

Dans son projet de prescriptions concernant le transport des colis contenant des sources radio-actives intenses, notamment du combustible irradié, l'A.I.E.A. propose une valeur de référence pour définir les températures maximales du contenu radio-actif.

Cette valeur de référence est la "température critique" de l'article de matières radio-actives destinées au transport.

Or, cette température est peu ou pas connue du fait notamment qu'elle dépend cas par cas de "l'article de matière radio-active" considéré, en l'occurrence du type d'élément de combustible et que, jusqu'à ce jour, aucun inventaire n'en a été dressé.

Tant que cette caractéristique n'est pas déterminée, le doute subsiste quant à la validité des stipulations réglementaires en matière de transport, quant à la conformité aux essais imposés aux emballages par ces règlements et quant à la valeur des spécifications des projets d'emballage. Cet état de choses suscite de graves difficultés aussi bien aux bureaux d'études chargés de concevoir et de proposer des solutions d'emballage pour combustible irradié qu'aux autorités compétentes chargées de délivrer les approbations et autorisations.

C'est pourquoi le programme, objet du contrat, a été établi.

A2 - Annexe technique

1. EXPOSE DES MOTIFS

Les sources radio-actives intenses dont relève le combustible irradié ont, entre autres caractéristiques, celle de dégager de l'énergie par désintégration.

La production de chaleur qui en résulte soulève le problème de son évacuation. En effet, cette évacuation doit être assurée dans des conditions telles que la température atteinte ne dépasse pas certaines valeurs:

- à la surface du colis pour assurer la sécurité du personnel affecté au transport et au déchargement,
- dans l'ensemble du colis afin de ne pas endommager l'emballage ou son contenu.

Les limites appropriées de la température à la surface du colis sont expressément spécifiées dans le Règlement révisé de l'A.I.E.A. Par contre, les limites de température interne du colis tombent, en ce qui concerne le combustible irradié, dans des dispositions qui ne sont introduites dans le Règlement révisé qu'à titre provisoire, en attendant les résultats d'une étude approfondie.

Le groupe d'experts, réunis à cet effet par l'A.I.E.A. à Vienne au mois de mars 1965, a considéré ce problème sous l'angle du combustible irradié et a proposé notamment une valeur de référence pour définir les températures maximales du contenu radio-actif dans les conditions normales de transport ainsi que dans les conditions accidentelles.

Cette valeur de référence est la "température critique" par laquelle on entend, pour un article de matière radio-active, la température minimale de cette matière à laquelle cet article, intact à l'origine, se détériore au point de dégager 0,1 % de son contenu radio-actif en 48 heures, sans toutefois que la matière dégagée ait une activité bêta/gamma supérieure à 100 Ci ou une activité alpha supérieure à 1 Ci.

Or, cette température est peu ou pas connue du fait notamment qu'elle dépend cas par cas de "l'article de matière radio-active" considéré, en l'occurrence du type d'élément de combustible et que, jusqu'à ce jour, aucun inventaire n'en a été dressé.

Tant que cette caractéristique n'est pas déterminée, le doute subsiste quant à la validité des stipulations réglementaires en matière de transport, quant à la conformité aux essais imposés aux emballages par ces règlements et quant à la valeur des spécifications des projets d'emballage. Cet état de chose suscite de graves difficultés aussi bien aux bureaux d'études chargés de concevoir et de proposer des solutions d'emballage pour combustible irradié qu'aux autorités compétentes chargées de délivrer les approbations et autorisations.

2. PROGRAMME D'ETUDE

C'est pourquoi, au titre d'une étude préliminaire, le présent programme de recherches bibliographiques et d'études théoriques a été arrêté, en vue de mettre en évidence les éléments qu'il sera nécessaire de déterminer ou de vérifier expérimentalement.

2.1 Etudes bibliographiques

Compilation et examen détaillé des documents relatifs

- 2.1.1 au relâchement des gaz de fission ;
- 2.1.2 à l'établissement de la pression de ces gaz entre le combustible et sa gaine ;
- 2.1.3 à la diffusion de ces gaz à travers la gaine ;
- 2.1.4 à la résistance de la gaine dans son ensemble et en particulier au droit des soudures en tenant compte notamment
 - de l'irradiation
 - de la corrosion
 - des cyclages thermiques

Pour les types d'éléments de combustible suivants :

- a) U naturel gainé avec
 - i) Magnox (ex. : Latina)
 - ii) aluminium (ex. : FR 2)
 - iii) acier inoxydable ;
- b) U Al₃ gainé d'aluminium (ex. : Ispra 1)
- c) UO₂ gainé avec
 - i) acier inoxydable (ex. : Selni)
 - ii) Zircaloy (ex. : Garigliano).

2.2 Etudes théoriques

En fonction des résultats obtenus ci-dessus :

- 2.2.1 interprétation et corrélation des facteurs, paramètres, conditions ... intervenant dans la détermination de la température critique ;

- 2.2.2 mise en évidence des lacunes apparaissant dans ce domaine ;
- 2.2.3 essais de résolution par voie théorique ;
- 2.2.4 définition des essais à réaliser pour combler les lacunes restantes et différenciation de ceux-ci selon qu'ils doivent être exécutés sur éléments combustibles irradiés réels ou selon qu'ils peuvent être réalisés sur modèles réduits ou capsules irradiées à l'appui de lois de similitude justifiées ;
- 2.2.5 parallèlement à l'exécution des tâches 2.2.1 à 2.2.4, analyse critique des définitions et des spécifications en cours d'adoption par l'A.I.E.A. dans le domaine des emballages pour "grandes sources radio-actives", notamment en ce qui concerne la température maximale du contenu radio-actif dans les conditions normales de transport
 - en présence d'une pression normale du milieu caloporteur primaire,
 - en cas de perte du milieu caloporteur primaire suite à l'épreuve mécanique.

On étudiera plus particulièrement la validité de la limite de température proposée dans le cas où la résistance mécanique des éléments de combustible aurait été altérée par des chocs résultant, par exemple, des essais de chute auxquels doivent satisfaire les colis, aux termes du Règlement révisé de l'A.I.E.A.

2.3 Elaboration du programme d'études expérimentales

A partir des résultats du point 2.2.4

- 2.3.1 établissement du programme d'essais
- 2.3.2 suggestions pour leur réalisation pratique.

ANNEXE B

Table des matières des différentes parties du présent rapport.

PARTIE II

Titre : "Caractérisation des éléments combustibles et des conditions d'exploitation dans le réacteur"

Auteurs et organismes : V. Baffigo (SORIN)
S. Baldetti (MONTECATINI-EDISON)

Table :

	Page
1. Introduction	1
2. Elément combustible "Latina"	2
2.1 Description générale	2
2.2 Données générales	3
2.3 Coeur	4
2.4 Elément combustible	4
2.5 Caractéristiques des matériaux et méthode de fabri- cation des éléments combustibles	6
2.6 Expérience d'exploitation	7
2.7 Bibliographie des éléments combustibles "Latina" .	8
3. Elément combustible "Garigliano"	10
3.1 Description générale	10
3.2 Données générales	11
3.3 Coeur	11
3.4 Elément combustible	11
3.5 Caractéristiques des matériaux et méthode de fabri- cation des éléments combustibles	13
3.6 Expérience d'exploitation	15
3.7 Bibliographie des éléments combustibles "Garigliano"	18
4. Elément combustible "Trino"	20
4.1 Description générale	20
4.2 Données générales	22
4.3 Coeur	22
4.4 Elément combustible	22
4.5 Caractéristiques des matériaux	24
4.6 Expérience d'exploitation	25
4.7 Bibliographie des éléments combustibles "Trino" .	26

	Page
5. Eléments MTR	30
5.1 Description générale	30
5.2 Spécifications techniques pour éléments combustibles type MTR gainés d'aluminium	32
5.2.1 Généralités	32
5.2.2 Caractéristiques dimensionnelles de l'élément standard	32
5.2.3 Caractéristiques dimensionnelles de l'élément de contrôle	32
5.2.4 Méthode de fabrication	33
5.2.5 Matériaux utilisés pour le gainage et le support	33
5.2.5.1 Alliage pour l'âme	33
5.2.5.2 Gainage	33
5.2.5.3 Embouts	33
5.2.5.4 Plaques latérales	33
5.2.6 Matières fissiles	34
5.2.6.1 Enrichissement	34
5.2.6.2 Pureté	34
5.2.6.3 Poids	34
5.2.7 Marquage	34
5.2.8 Traitement en surface	35
5.2.9 Contrôles et normes de réception	35
5.2.9.1 Contrôles des matériaux	35
5.2.9.2 Contrôles des plaques	35
5.2.9.2.1 Position et homogénéité de l'âme	35
5.2.9.2.2 Contact entre la gaine et l'âme	36
5.2.9.2.3 Décontamination des plaques	36
5.2.9.3 Epaisseur de la gaine	36
5.2.9.4 Examen visuel des plaques	36
5.2.9.5 Contrôles effectués sur les éléments déjà montés	37
5.2.9.5.1 Contrôle visuel	37
5.2.9.5.2 Fiche et contrôles dimen- sionnels	37
5.2.9.6 Permutation et tolérance	37
5.2.9.7 Dégraissage, nettoyage final, embal- lage	37
5.3 Caractéristiques thermiques, hydrauliques et chimico- physiques relatives au fonctionnement d'un type de réacteur (Avogadro RS) qui utilise des éléments MTR	37
5.3.1 Modérateur	37
5.3.2 Réflecteur	38
5.3.3 Refroidissement	38
5.3.4 Masse critique	38

	Page
5.3.5 Radionucléides présents dans l'eau de refroidissement primaire	38
5.3.6 Température de l'eau	38
5.4 Bibliographie des éléments MTR	40

PARTIE III

Titre : "Propriétés physico-mécaniques des matériaux fissiles
pré et post-irradiation"

Auteurs et organismes : V. Baffigo, G.L. D'Auria,
A. Amato (SORIN)

Table :

	Page
1. Introduction	1
2. Caractéristiques de l'uranium métallique	1
2.1 Caractéristiques physiques	1
2.1.1 Chaleurs latentes de transformation	1
2.1.2 Chaleur spécifique et chaleur totale	2
2.1.3 Conductibilité thermique	4
2.1.4 Conductibilité thermique après irradiation	5
2.1.5 Dilatation thermique	6
2.1.6 Densité	9
2.1.7 Résistivité électrique	9
2.1.8 Résistivité électrique après irradiation	10
2.1.9 Vitesse du son	11
2.1.10 Constantes élastiques - module élastique	11
2.1.11 Rapport de Poisson	11
2.1.12 Module d'élasticité après irradiation	14
2.2 Caractéristiques mécaniques	14
2.2.1 Considérations générales	14
2.2.2 Dureté avant l'irradiation	15
2.2.3 Dureté après l'irradiation	16
2.2.4 Caractéristiques mécaniques mises en évidence par l'essai de traction avant l'irradiation	18
2.2.5 Comportement à l'essai de traction pendant l'irradiation neutronique	23
2.2.6 Comportement à l'essai de traction après l'irradiation neutronique	24
2.2.7 Résilience avant l'irradiation	31
2.2.8 Résilience après l'irradiation	32

	Page
2.2.9 Caractéristiques de fatigue	32
2.2.10 Fluage visqueux avant irradiation	33
2.2.11 Fluage visqueux pendant l'irradiation neutronique	40
2.2.12 Fluage visqueux après irradiation neutro- nique	44
2.2.13 Creep relatif à des éléments combustibles anglais	45
2.3 Effet du cyclage thermique sur l'uranium métalli- que	47
2.3.1 Introduction	47
2.3.2 Le cyclage thermique dans l'uranium métal- lique	50
2.3.3 Effet du cyclage thermique avec une tempé- rature supérieure dans le champ de phase .	59
2.3.4 Corrélation entre l'accroissement par irradiation neutronique et le cyclage thermique	59
3. Alliages d'U-Al pour éléments combustibles MTR . . .	63
3.1 Introduction	63
3.2 Caractéristiques	64
3.2.1 Caractéristiques physiques	64
3.2.1.1 Conductibilité thermique avant irradiation	64
3.2.1.2 Coefficients de dilatation linéaire avant irradiation	64
3.2.2 Caractéristiques mécaniques avant irra- diation	65
3.2.2.1 Dureté avant l'irradiation	65
3.2.2.2 Dureté après l'irradiation	66
3.2.2.3 Caractéristiques mécaniques à chaud	66
3.2.2.4 Fluage visqueux	67
3.2.2.5 Caractéristiques dimensionnelles après irradiation	68
4. Caractéristiques de l'UO ₂	68
4.1 Propriétés structurelles et physiques avant l'irradiation	68
4.2 Caractéristiques mécaniques et chimiques avant l'irradiation	78

	Page
4.3 Caractéristiques physiques et mécaniques après irradiation	78
Annexe A : Variations de certaines propriétés physiques et mécaniques avec l'irradiation des éléments combus- tibles du type Magnox	81
Bibliographie	82

PARTIE IV

Titre : "Altérations dimensionnelles de l'uranium métallique
par irradiation neutronique".

Auteurs et organismes : G.L. D'Auria, S. Szabó Miszenti
(SORIN)

Table :

	Page
1. Introduction	1
1.1 Définition du problème	1
1.2 Généralités sur le comportement à l'irradiation de l'uranium métallique	2
1.3 Exposé des arguments	6
2. Déformations linéaires : accroissement (Growth). .	9
2.1 Généralités sur le phénomène	9
2.2 Corrugation (Wrinkling)	14
2.3 Effet de la texture du matériau sur l'accrois- sement	18
2.3.1 Indices d'accroissement	18
2.3.2 Travail et traitements thermiques . . .	19
2.4 Résultats expérimentaux relatifs aux élé- ments UKAEA	30
2.5 Données sur l'effet des liens externes sur l'instabilité dimensionnelle	37
3. Gonflement (Swelling)	39
3.1 Introduction	39
3.2 Données génériques relatives au gonflement de l'uranium métallique sous irradiation neutronique	42

	Page
3.3 Uranium ajusté et similaires - résultats de source anglaise	69
3.4 Relations empiriques entre les valeurs du gonflement et le taux de combustion dans des éléments irradiés dans les réacteurs anglais . .	74
3.5 Effet d'additifs spéciaux sur le gonflement de l'uranium de haute pureté et comportement de l'uranium ajusté	77
3.6 Traitements de recuit postirradiation et effet de la pression externe sur le gonflement	86
3.7 Effet des liens extérieurs sur le gonflement de l'uranium sous irradiation	113
3.8 Gonflement des barres d'uranium revêtues par coextrusion avec du Zircaloy-2	116
3.9 Gonflement d'un élément tubulaire d'uranium gainé de Zircaloy-2	121
3.10 Notes sur les résultats des examens d'éléments anglais irradiés à Windscale et Calder Hall	121
Bibliographie	126

PARTIE V

Titre : "Propriétés mécaniques des matériaux de gainage et de support et effets de l'irradiation"

Auteur et organisme : M. Castagna (SORIN)

Table :

	Page
1. Introduction	1
2. Effets de l'irradiation sur les propriétés mécaniques des aciers inoxydables austénitiques	4
3. Effets de l'irradiation sur les propriétés mécaniques du Zircaloy-2	32
4. Effets de l'irradiation sur les propriétés mécaniques de certains alliages d'aluminium	52
5. Effets de l'irradiation sur les propriétés mécaniques du Magnox A 12	58
Bibliographie	60

PARTIE VI

Titre : "Diffusion des produits de fission dans des matériaux fissiles"

Auteurs et organisme : V. Baffigo, V. Amato (SORIN)

Table

	Page
1. Introduction	1
2. Diffusion des produits de fission de UO_2	1
3. Diffusion des produits de fission dans l'uranium métallique	16
4. Conclusions	20
Bibliographie	21

PARTIE VII

Titre : "Diffusion des produits de fission dans des matériaux de gainage"

Auteur et organisme : F. Pieragostini (SORIN)

Table:

	Page
1. Introduction	1
2. Diffusion dans une gaine d'Al	1
3. Diffusion dans une gaine d'acier inoxydable	3
4. Diffusion dans une gaine de Magnox	4
5. Diffusion dans une gaine de Zircaloy	4
6. Calcul du coefficient D pour le Xe dans l'Al	4
7. Conclusions	6

PARTIE VIII

Titre : "Essais de calcul du relâchement de produits de fission
par diffusion en provenance d'éléments du type MTR et
Latina"

Auteur et organisme : A. Ascari (SORIN)

Table:

	Page
1. Introduction	1
2. Hypothèses et limites du calcul	2
3. Sommaire des résultats analytiques	5
3.1 Élément MTR	5
3.2 Élément Latina	6
4. Considérations numériques sur les résultats	9
4.1 Couche plane	9
4.2 Cylindre non gainé	10
5. Graphiques des résultats pour l'élément type MTR	12
Annexe - Dédutions des résultats analytiques	16
A1. Couche plane avec et sans gainage	16
A2. Cylindre avec gainage	23
A3. Cylindre sans gainage	32
A4. Le développement de $f(t)$ pour petit t dans les éléments gainés	36
Bibliographie	39

PARTIE IX

Titre : "Tentatives de calcul de l'importance du relâchement
de produits de fission, dû à l'éclatement du gainage,
par des éléments du type PWR et BWR"

Auteurs et organisme : A. Ferreli, R. Crostini (CNEN)

Table:

	Page
1. Introduction	1

	Page
2. Quantité des produits de fission dans le combustible irradié	2
2.1 Eléments qui contribuent à une augmentation de pression	2
2.2 Eléments importants du point de vue radiologique.	4
3. Pourcentages des gaz de fission relâchés par l' UO_2 au cours de l'exploitation dans le réacteur	6
3.1 Limites du modèle de la diffusion dans le calcul du relâchement des produits de fission par l' UO_2 .	14
4. Calcul du build-up de pression dans une barre de combustible	15
5. Calcul des tensions dans le gainage d'un élément combustible dues au build-up de pression	16
6. Vérification de la résistance du gainage	17
6.1 Aperçus sur les caractéristiques de résistance de matériaux habituellement utilisés comme gainage des barres d' UO_2	18
7. Relâchement des produits de fission à la suite de la rupture du cladding	19
7.1 Activités des produits de fission dans l'écart au moment de l'accident	20
7.2 Relâchement ou provenance d'éléments fissurés par oxydation de l' UO_2	24
8. Conclusions	27

Annexe C : Propositions de recherches expérimentales

La présente annexe contient deux propositions concrètes de recherches expérimentales destinées à combler les lacunes qui ont été mises en lumière au § 4.

La première proposition, à l'élaboration de laquelle ont collaboré MM. F. Pieragostini et G. Fiorito, de SORIN, concerne des mesures de coefficients de diffusion de produits de fission dans des matériaux de gainage, tels que l'aluminium et le magnox.

La seconde proposition, qui a été rédigée en commun par MM. V. Baffigo de SORIN et J.M. Junger du CCR Euratom à Ispra, concerne des mesures directes de relâchement de produits de fission par des éléments de combustible irradiés.

Annexe C: Propositions de recherches expérimentales

Proposition n° 1

DIFFUSION DE PRODUITS DE FISSION DANS DES MATERIAUX DE GAINAGE

1. Introduction

Il ressort de l'étude (qu'elle soit bibliographique ou théorique) contenue dans le présent rapport final (+), qu'en raison des lacunes très importantes qui subsistent quant à la connaissance des coefficients de diffusion des produits de fission dans l'aluminium et le Magnox, il n'est pas possible d'exploiter actuellement les résultats des calculs effectués en vue d'évaluer les relâchements tant au cours d'un accident thermique de transport d'éléments combustibles irradiés du type MTR et Magnox, que dans des conditions normales de transport.

En effet, on ne dispose pour l'élément MTR que de courbes de relâchement dans différentes conditions (élément gainé et nu, différents temps de diffusion, etc.) en fonction du paramètre D (coefficient de diffusion dans l'aluminium); pour l'élément Magnox, des formules analytiques générales ont été établies pour le relâchement, dont la numération exige la connaissance d'au moins un ordre de grandeur pour les coefficients de diffusion dans l'uranium et le Magnox.

La présente proposition porte sur des expériences devant permettre de déterminer les coefficients de diffusion dans l'aluminium et si possible dans le Magnox pour des produits de fission significatifs, sous différentes températures, conformément à ce qui est spécifié ci-dessous.

(+) Pour l'analyse bibliographique, voir en particulier la partie VII et le paragraphe 3-7 de la partie I; pour les calculs, voir la partie VIII et le paragraphe 3-8 de la partie I, et, d'une manière générale, le paragraphe 4-1 de la partie I.

2. Description de l'étude et des méthodes proposées

On effectuera des expériences de diffusion dans de l'aluminium et, si possible, dans du Magnox, à différentes températures présentant un intérêt, jusqu'au voisinage du point de fusion du matériau, pour différents éléments diffusants.

On étudiera en premier lieu la possibilité technique d'effectuer les expériences sur certains produits de fission (ou sur des isotopes de ces produits), tels que Ba, Ca, Ce, Cs, I, Kr, Nb, Pm, Sr, Te, Xe, Y, etc. Dans l'alternative (au cas où les conditions techniques seraient plus favorables) on étudiera d'autres éléments diffusants, dans les mêmes matrices, afin de vérifier si des relations semi-empiriques \sqrt{D} valent pour ces matrices, relations dont la validité a déjà été démontrée dans d'autres matrices (Ag, Cu, Ni, Ti), parmi quelques paramètres de diffusion et le rayon ionique de l'élément diffusant.

Ces relations, une fois démontrées valables également dans le cas des matrices considérées, permettraient (sans que d'autres expériences soient nécessaires) de parvenir à une estimation des coefficients de diffusion à une température quelconque pour n'importe quel produit de fission.

On procédera à l'expérience, en tout cas, à au moins trois températures différentes (de préférence à cinq ou même plus), afin de vérifier la validité de l'équation d'Arrhenius $D = D_0 e^{-\frac{Q}{RT}}$ permettant de calculer le coefficient D à une température T quelconque. On vérifiera, par ailleurs, le caractère physique (loi de Fick) de la diffusion ou l'effet concomitant de liens chimiques entre la matrice et l'élément diffusant.

On appliquera, en alternative et après avoir examiné, au préalable, les perspectives qu'elles offrent, pour chaque élément choisi, trois méthodes principales de mesure: celle des traceurs radio-actifs, celle de l'injection des fragments de fission et enfin, la méthode résistométrique.

Le principe de ces méthodes sera rapidement esquissé ci-dessous.

a) Méthode des traceurs radio-actifs

Cette méthode semble être, à première vue, celle que l'on applique le plus souvent. C'est la mieux connue et la plus expérimentée.

Elle consiste à mettre en contact intime la matrice (de forme et de dimensions adéquates) avec l'élément diffusant (sous forme adéquate), afin d'effectuer un traitement isothermique de

diffusion pour une certaine durée à la température choisie et afin de mesurer la radio-activité dans des sections successives du matériau. La comparaison entre le profil de concentration ainsi déduit et les résultats d'un calcul paramétrique en fonction de D permet d'obtenir, après vérification préalable du caractère physique de la diffusion, la valeur de D à cette température.

L'expérience est répétée, si possible, au moins à trois températures différentes, afin d'établir la validité de la relation d'Arrhenius ainsi que les coefficients D_0 et Q qui permettent le calcul de D à une température quelconque.

Des divergences entre le déroulement de l'expérience et la démarche théorique peuvent signifier l'effet concomitant d'autres mécanismes sur le processus de diffusion, mécanismes qui seront analysés suivant chaque cas en relation avec les objectifs pratiques de la recherche (problèmes du relâchement pendant le transport de combustible).

Cette technique présente certaines difficultés tant pour la préparation des surfaces de contact (élimination de barrières dues à des couches d'oxyde ou à des impuretés) que pour la préparation du contact (dépôt électrolytique [27], par compression à chaud d'un alliage adéquat contenant le traceur [37], par évaporation sous vide, etc.), et en ce qui concerne la régularité du sectionnement (10^{-3} - 10^{-2} mm d'épaisseur).

Un des principaux avantages consiste dans le fait qu'on dispose, en général, des traceurs appropriés, même s'ils ne sont pas directement obtenus en tant que produits de fission. Il y a lieu, parfois, de tenir compte d'un effet isotopique (c'est-à-dire du comportement différent à l'égard des diffusions d'isotopes du même élément), bien que cet effet soit encore controversé. Son ordre de grandeur ne paraît pas, toutefois, gêner les évaluations dont il est question dans la présente étude.

b) Méthode de l'injection des fragments de fission

Cette méthode [47] [57] constitue une variante élégante de la méthode des traceurs, variante qui porte essentiellement sur le procédé d'application des traceurs à la matrice.

Une mince couche d'U est déposée ou placée face à la matrice. L'ensemble est irradié à des flux et à des temps convenables dans le réacteur. Les fragments de fission pénètrent dans toutes les directions dans le matériau et constituent une fine

couche superficielle de l'épaisseur d'un dixième de micron (égal au rang des fragments) à des concentrations uniformes.

L'uranium éliminé, les processus de diffusion se déroulent comme dans le cas précédent pour les produits non volatils (exemple: Ba, Ce, Zr, Nb, Ru). La mesure de l'activité implique en général une spectrométrie gamma (permettant de reconnaître les pics d'intérêt relatifs à des produits émetteurs gamma) ou une séparation radiochimique.

Pour les produits volatils ou gazeux (exemple: Xe, Kr, I), il est possible, par contre, de recourir à des techniques analogues à celles déjà utilisées pour l' UO_2 (post-irradiation annealing), dans lesquelles le traitement thermique de diffusion a lieu sous un gaz d'entraînement, l'activité étant recueillie et mesurée dans des pièges sélectifs.

L'optimisation des paramètres d'irradiation et des temps d'attente permet de faciliter les mesures pour des produits de fission donnés. Cette méthode a été appliquée avec succès à la mesure des coefficients de diffusion et de l'évaporation superficielle de certains produits de fission (Xe, Ba) dans le cas du pyrocarbone /47/.

c) Méthode résistométrique

Cette méthode a déjà été développée sous une forme appropriée /57/ et semble présenter des caractéristiques de simplicité intéressantes, au moins dans le cas des matrices pures (Al).

A la matrice ayant une forme adéquate (de préférence un fil cylindrique, probablement également une petite plaque), on applique le matériau diffusant (isotope non radio-actif du produit de fission considéré) sous forme d'une mince couche superficielle par évaporation sous vide (éventuellement par du Ba, Ce, Sr, Te, Y), ou par dépôt électrolytique (éventuellement par du Pm), ou par dépôt électrolytique à partir de la phase vapeur d'un composé instable adéquat (éventuellement par du Nb) /77/ /87/.

On entreprend ensuite une série de traitements de diffusion en mesurant la résistivité du fil après chaque traitement. La comparaison de la résistivité mesurée avec les résultats calculés en fonction du paramètre D permet de remonter à la connaissance de D (après vérification du caractère physique de la diffusion obtenue à partir de ces données).

L'avantage de cette méthode à caractère intégral consiste dans la simplicité relative des mesures (un pont de précision suffit) et dans l'absence de radio-activité.

Des difficultés subsistent, néanmoins, pour certains éléments en ce qui concerne le dépôt superficiel qui doit avoir lieu dans des conditions d'extrême propreté et d'une manière uniforme.

La méthode en question a été appliquée dans un cas offrant un intérêt (Zn dans de l'Al) [67], où elle a donné des résultats satisfaisants.

Du fait qu'elle comporte des manipulations et des mesures (résistivité) pouvant facilement être effectuées à distance et qu'elle peut être appliquée à des échantillons de matrice de faible masse (fils minces), cette méthode semble particulièrement indiquée dans les cas où l'on désire étudier des diffusions dans des matrices irradiées (après analyse préalable des essais concomitants sur la résistivité de la matrice pure). En effet, les deux autres méthodes exigent des manipulations délicates et à vue (impliquant un certain risque pour l'opérateur) et peuvent donner des interférences entre l'activité de la matrice et l'activité du traceur.

3. Programme de travail

Il est prévu d'adopter, suivant les cas, une ou plusieurs des méthodes décrites ci-dessus en vue d'étudier certains cas de diffusion dans l'aluminium (et si possible dans le Magnox).

Le choix effectif des éléments et des méthodes spécifiques à adopter exige une étude préliminaire (bibliographique et expérimentale) qui fait partie de la présente proposition de recherche.

On trouvera ci-dessous la série d'opérations nécessaires pour chacune des trois méthodes proposées.

3.1 Méthode des traceurs

Cette étude comprendra les phases suivantes (successives et en partie simultanées) :

1. Choix de l'élément diffusant en fonction de la littérature, de l'expérience antérieure ainsi que des essais préliminaires qui doivent être effectués dans le cadre de la présente proposition.

2. Préparation métallographique de la matrice.
3. Etablissement du contact entre l'élément diffusant et la matrice (dépôt électrolytique, évaporation sous vide, compression à chaud; éventuel dépôt de l'élément inactif et activation ultérieure dans le réacteur).
4. Traitement thermique de diffusion.
5. Sectionnement de l'échantillon.
6. Mesure de la radio-activité pour cette section.
7. Elaboration et interprétation des données, déduction de D pour différentes températures, déduction de D_0 et Q, vérification des relations semi-empiriques, etc.
8. Utilisation des données pour certains exemples de calcul du relâchement dans des cas pratiques de transport (normaux et accidentels).

3.2 Méthode d'injection des fragments de fission

Cette étude comprendra les phases suivantes (successives et en partie simultanées) :

1. Choix du produit de fission à déterminer en fonction de la littérature, de l'expérience antérieure, des essais préliminaires qui doivent être effectués dans le cadre de la présente proposition.
2. Préparation de la matrice, dépôt de l'uranium dans une couche mince.
3. Optimisation des paramètres d'irradiation pour le produit de fission choisi et réalisation de l'irradiation dans le réacteur.
4. Séparation de l'uranium dans une cellule blindée et décontamination de l'échantillon.
5. Réalisation des traitements thermiques de diffusion.
6. Sectionnement de l'échantillon.
7. Détermination de la concentration du produit de fission (ou des produits de fission) choisi dans chaque section au moyen de la spectrométrie gamma ou de la séparation radiochimique.
8. Elaboration et interprétation des données comme dans le cas précédent.
9. Utilisation des données pour certains exemples de calcul du relâchement dans des cas pratiques de transport (normaux et accidentels).

3.3 Méthode résistométrique

On prévoit quelques essais d'application de cette technique relativement récente à des cas éventuels qui ne se prêteraient pas à une application des deux méthodes précédentes, mais qui paraîtraient réalisables du point de vue technique grâce à la méthode résistométrique (et également du point de vue d'une extension de cette étude au cas des matrices irradiées).

Les opérations qui doivent être effectuées successivement et en partie simultanément, sont les suivantes :

1. Analyse bibliographique destinée à fournir des informations sur les méthodes de dépôt dans les conditions voulues sur l'Al et le Magnox, sur les essais préliminaires de dépôt en vue d'obtenir l'optimum, etc.
2. Essais de traitement sans élément diffusant sur les matrices Al et Magnox et mesures de résistivité permettant d'étudier la présence éventuelle (notamment pour l'alliage Magnox) d'altérations intrinsèques (dus à la diffusion d'impuretés, de composants, etc.).
3. Pour l'élément choisi, prévision théorique (lorsque cela est possible) de l'effet sur la résistivité permettant d'étudier l'adéquation de la méthode et des instruments de mesure.
4. Préparation de la matrice et conditionnement de sa superficie (nettoyage par sputtering, etc.).
5. Réalisation du dépôt superficiel et contrôle de ce dépôt.
6. Traitements thermiques de diffusion à différentes températures pour différents temps.
7. Mesure de la résistivité.
8. Calculs théoriques dans la géométrie choisie en fonction du paramètre D.
9. Comparaison des données expérimentales et théoriques, déduction des paramètres de diffusion, etc. (comme dans les cas précédents).
10. Utilisation des données pour certains exemples de calcul du relâchement dans des cas pratiques de transport (normaux et accidentels).

BIBLIOGRAPHIE RELATIVE A LA PROPOSITION n° 1

- /17 R.H. Moore, Diffusion in body centered cubic metals, ASM 1965, p. 275.
- /27 R.P. Agarwala, S.P. Murarka, M.S. Anand, Acta Metallurgica, 12, 1964, p. 871.
- /37 T.S. Lundy, J.F. Murdock, J. Appl. Physics, 33, 1962, p. 1671.
- /47 B. Chinaglia, M. Domenici, F. Pieragostini, H. Walther, Studies on the structures, radiation damage, annealing and fission product diffusion in pyrolytic carbon, 3ème Conférence de Genève, Vol. 9, 1964, p. 399.
- /57 B. Chinaglia, G. Cocito, M. Domenici, F. Pieragostini, H. Walther, Basic studies on the structure of pyrolytic carbon, Projet Dragon, Rapport DP 322, déc. 1964.
- /67 S. Ceresara, T. Federighi, F. Pieragostini, Phys. Status Solidi, 16, 1966, p. 439.
- /77 L.D.F. Allen, Preparation of foils for nuclear particle targets, US Report L.A. 2769, 1962.
- /87 Cowell, Vapor plating : The formation of coatings by vapor deposition techniques, Wiley.

Proposition n° 2

EXPERIENCES DE RELACHEMENT, A HAUTE TEMPERATURE, DE PRODUITS DE FISSION, PAR DES ELEMENTS COMBUSTIBLES MTR IRRADIES

1. Avant-propos

La recherche, à la fois bibliographique et mathématique, dont fait état le présent rapport final (voir en particulier les parties VIII et IX résumées respectivement aux § 3.8 et 3.9 de la partie I, et le § 4.2 de la partie I, auxquels nous vous prions de vous reporter, ceci afin d'éviter des répétitions) a montré que par suite des lacunes très considérables constatées dans les données de base et des incertitudes dans les hypothèses formulées pour les calculs, il serait utile de procéder à des expériences directes à l'échelle réelle ou quasi réelle, susceptibles de fournir des données sur le relâchement de produits de fission par des éléments combustibles irradiés de type MTR, Magnox, PWR et BWR, ou par des parties de ces éléments, dans des conditions simulant l'accident thermique de transport.

Il est proposé par conséquent d'entamer la première phase d'un programme général. Cette première phase comprend des mesures du relâchement fractionnaire de certains produits de fission, dont certains sont considérés comme particulièrement dangereux du fait de leur radiotoxicité et de leur volatilité, provenant d'éléments combustibles du type MTR, ou de parties de ces éléments (plaques entières), normalement irradiés dans des réacteurs de recherche (taux d'épuisement final 20-30 %), après une période d'attente appropriée.

Les éléments ou leurs parties seront soumis en laboratoire à des conditions thermiques semblables à celles d'un accident thermique de transport (température élevée stationnaire, lente montée de température, etc.). Les produits s'échappant seront utilement recueillis en fonction du temps et déterminés quantitativement.

L'étude d'éléments Magnox, puis d'éléments PWR (Trino) et BWR (Garigliano) en vue d'essais d'éclatement du gainage, serait réservée pour d'éventuelles phases ultérieures du programme.

Les résultats obtenus lors de cette première phase, exprimés par exemple en tant que relâchement fractionnaire de produits de fission donnés, en fonction du temps à température constante, peuvent être comparés directement, pour ce qui est de l'ordre de grandeur, avec les résultats de la proposition n° 1 précédente, tirés des calculs de la partie VIII, avec introduction des coefficients de diffusion établis suivant ladite proposition.

En outre, on tentera d'interpréter les inévitables discordances en cherchant à établir une corrélation entre les résultats et l'état réel des éléments combustibles (état des surfaces, égratignures, corrosion, autres défauts, etc.).

Enfin, on procédera, lorsque cela sera possible, à des expériences sur des parties d'élément rendues intentionnellement défectueuses.

2. Considérations générales sur les phénomènes de diffusion

Les processus les plus importants qui favorisent le relâchement, dans le milieu ambiant, des produits de fission provenant d'éléments combustibles irradiés sont en général les suivants :

- 1) Vaporisation de formes élémentaires de composants volatils, notamment l'iode, le brome, le césium et le ruthénium, ainsi que diffusion des deux gaz nobles, le xénon et le krypton.
- 2) Diffusion, sous forme d'oxyde, suivie de dispersion dans le milieu ambiant dudit oxyde à haute température, par exemple les oxydes de molybdène et de technétium, et à basse température, l'oxyde de ruthénium.
- 3) Vaporisation d'éléments à haute température, en l'absence d'air, par exemple le baryum, le sélénium, le strontium et le tellurium.
- 4) Formation de composés chimiques entre deux produits de fission, notamment les halogènes.

Pour évaluer le comportement des produits de fission, il est utile de se référer à la stabilité thermodynamique de leurs oxydes (cf. tableau I) et à la tension de vapeur (cf. figure 1).

On constate que ce sont les oxydes de ruthénium, de césium, de tellurium et de molybdène dont l'énergie libre de formation est la plus basse. À remarquer en outre que, puisque le césium et le tellurium sont tous deux volatils et qu'en même temps leurs oxydes sont facilement dissociables, ces deux éléments peuvent être obtenus, soit sous forme simple à partir de l'élément combustible, soit à partir des oxydes dissociés.

Les courbes des tensions de vapeur peuvent être utilisées pour prévoir le comportement des éléments volatils suivants: césium, rubidium, baryum, strontium.

En présence d'air ou de vapeur, on freine la vaporisation du strontium et du baryum, étant donné que les oxydes respectifs de ces deux éléments ne sont pas facilement dissociables, alors que, dans un courant de gaz noble (argon, hélium: cette condition sera adoptée lors de certaines phases du travail expérimental), les deux éléments précités accusent une grande volatilité.

TABEAU 1

ENERGIE LIBRE DE FORMATION DES OXYDES D'ELEMENTS DE FISSION (1)

(Kilocaries par volume)

Composé	1000°K	1500°K	2000°K
La_2O_3	123	112	100
Ce_2O_3	120	107	94
Pr_2O_3	120	107	94
SrO	116	102	80
UO_2	109	99	88
ZrO_2	108	97	86
BaO	111	95	80
PuO_2	100	95	85
Nb_2O_5	76	66	61
MoO_2	46	39	32
TeO_2	16	5	- 7,3
Cs_2O	35	3,6	- 16
RuO_2	6	- 2,7	- 10

(1) A. Glassner, A Survey of the Free Energies of Formation of the Fluorides, Chlorides, and Oxides of the Elements to 2500°K, ANL-5107 (août 1953)

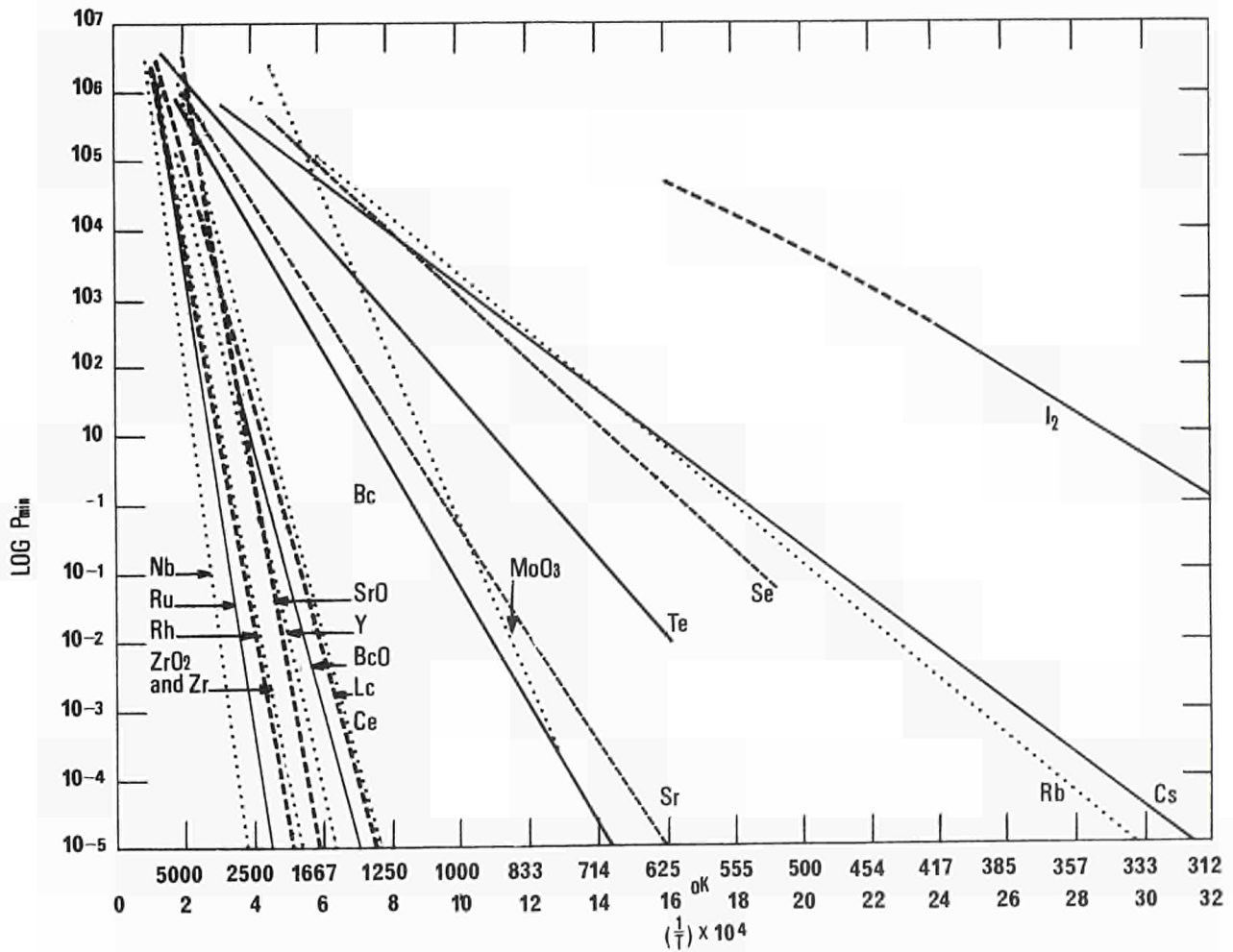


Fig. 1 - Tension de vapeur de métaux et d'oxydes.
(de G.E. Creek, W.S. Martin et G.W. Parker,
ORNL 2616).

3. Description de l'expérience

Dans un four à gaz inséré dans un circuit, comme le montre schématiquement la figure 2, on place l'échantillon à étudier (constitué soit par une seule plaque, soit par un élément de combustible entier), qui est entouré par un courant de gaz entraînant les produits de fission vers les pièges ou les groupes de blocage correspondants.

On envisage d'effectuer l'expérience avec deux gaz entraîneurs: l'hélium et l'air. Avec l'hélium, les conditions expérimentales sont plus simples vu l'absence de phénomènes d'oxydation et de corrosion en surface ce qui permettra une comparaison directe avec les résultats des calculs.

Avec l'air, on se rapprochera davantage des conditions du transport, en y ajoutant l'effet de phénomènes chimiques, moins faciles à prévoir quantitativement.

Les expériences seront menées à différentes températures, maintenues constantes pendant le cycle de mesures. La température la plus élevée sera légèrement inférieure au point de fusion de l'alliage d'aluminium constituant la gaine, pour autant que cela est compatible avec le volume du relâchement observé, en fonction des capacités de comptage et d'analyse existantes.

On examinera s'il y a lieu de mieux simuler le transitoire thermique d'un accident de transport par une montée graduelle (rampe) de température. Il sera cependant plus difficile dans ce cas d'établir d'utiles comparaisons avec des résultats théoriques.

Les produits à étudier les plus dignes d'intérêt sont les suivants :

I ¹³¹	Sr ⁹⁰
Xe ¹³³	Cs ¹³⁷
Kr ⁸⁵	Pu ²³⁹
Ru ¹⁰³	Ce ¹⁴⁴
Ru ¹⁰⁶	Zr-Nb ⁹⁵

L'iode sera arrêté chimiquement par un lit de copeaux de cuivre, contenu dans un piège ad hoc, ou par une couche de billettes de NaOH, que l'on traitera ensuite, le cas échéant, pour l'extraction de l'iode précité.

Les gaz rares seront piégés sur carbone actif à la température de l'azote bouillant, si le gaz entraîneur est l'hélium, et à une température plus élevée si l'on utilise l'air.

Les produits solides et les vapeurs condensables seront arrêtés par des batteries de filtres "millipores" et par de la laine de quartz refroidie, ou par un piège à carbone actif à la température de -70°C .

Les filtres "millipores" ont l'avantage de se dissoudre dans les acides forts, ce qui facilite l'analyse radiochimique des éléments retenus.

Les pièges et les filtres seront mis en batterie, en parallèle, de sorte que leur enlèvement, quelle qu'en soit la cause, puisse se faire sans interrompre l'expérience: par exemple pour procéder à des mesures après coup à intervalles constants.

Il sera nécessaire d'effectuer une série d'essais préliminaires pour déterminer l'efficacité des différents systèmes exposés ci-dessus, afin de choisir, pour l'expérience, ceux qui conviendront le mieux.

Le système sera muni d'une chaîne de comptage linéaire pour la détermination quantitative des gammas émetteurs. D'autre part, les éléments bêta émetteurs seront analysés dans un laboratoire distinct par séparation radiochimique préalable.

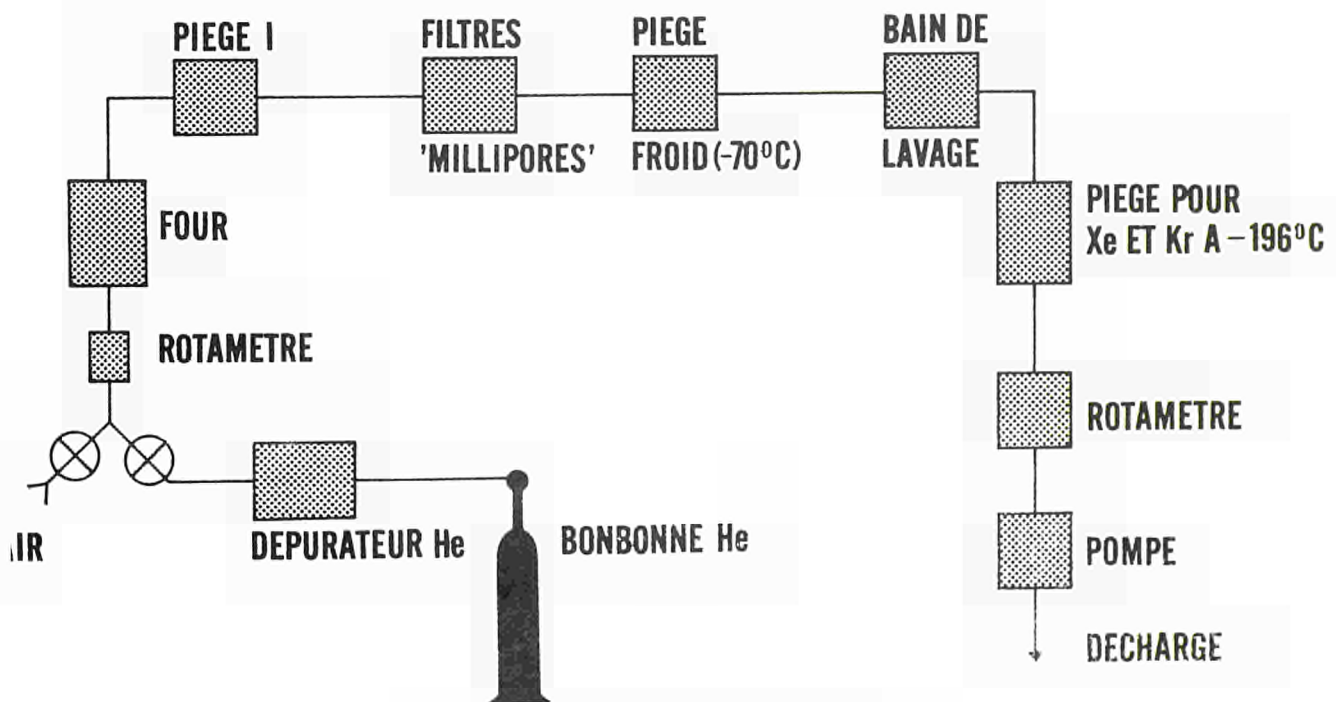


Fig. 2 - Schéma du circuit

Afin d'obtenir, pour chaque produit de fission, le relâchement fractionnaire F (grandeur directement comparable avec le calcul), il est nécessaire d'évaluer la teneur initiale de ce produit dans le combustible. On propose: soit de calculer la teneur initiale à partir de l'histoire nucléaire de l'élément, dans la mesure où on la connaît avec une approximation suffisante, soit de la mesurer par la voie de l'analyse radiochimique de portions du combustible utilement prélevées, soit enfin d'effectuer des expériences séparées, qui consisteront à fondre des portions du combustible, utilement prélevées, puis à recueillir et à mesurer les produits de fission émis.

4. Programme de travail

Le travail devra être divisé en différentes phases successives et partiellement concomitantes, qui sont les suivantes :

- a) Essais en laboratoire pour la sélection des pièges, la détermination de leurs caractéristiques, de leur efficacité, etc.
- b) Conception et projet du circuit.
- c) Réalisation et réception du circuit.
- d) Désassemblage des éléments, examens visuels et éventuellement dimensionnels, photographie des échantillons.
- e) Exécution de l'expérience de relâchement de produits de fission.
- f) Analyse des produits de fission recueillis.
- g) Détermination des produits de fission contenus dans des portions de combustible.
- h) Elaboration et interprétation des données.

Suit une brève analyse de certains aspects techniques des phases précitées.

5. Analyse du programme de travail

a) Essais en laboratoire pour la sélection des pièges, la détermination de leurs caractéristiques, de leur efficacité, etc.

Ces essais comporteront l'aménagement d'un circuit à échelle réduite par rapport au circuit réel, monté dans une hotte blindée. On n'utilisera que quelques millicuries de produits actifs offrant de l'intérêt et des matières non actives.

Les essais seront effectués avec les gaz entraîneurs, c'est-à-dire l'hélium et l'air, chargés respectivement dans un réservoir qui simulera le four en même temps que les produits à étudier. Ils consisteront à aspirer le mélange à débit contrôlé à travers les pièges et filtres du circuit au moyen de la petite pompe indiquée ci-dessous, puis à contrôler la rétention des différents éléments par analyse des groupes de blocage.

Chaque groupe de blocage comportera plusieurs unités montées en série, afin que l'on puisse constater avec quelle efficacité chacune d'elles bloque l'élément retenu.

On effectuera également des essais pour déterminer éventuellement les dépôts de produits de fission sur les parois des conduits.

L'équipement nécessaire à ces essais est le suivant :

- Pompe à vide.
- Réservoir devant contenir le mélange à analyser (simulateur du four).
- 2 rotamètres à débit réduit.
- Pièges et filtres.
- Petite pompe aspirante.

b) Projet du circuit

Il consistera en une étude de la conception du circuit, avec dimensionnement des différents éléments et du blindage de protection, ainsi que le calcul du seuil d'activité que chaque groupe de blocage ne devra pas dépasser avant d'être retiré et envoyé aux appareils de mesure, en fonction des capacités de comptage et d'analyse existantes.

c) Réalisation du circuit et réception

La partie mécanique et structurelle pourrait être confiée à des ateliers spécialisés, sur la base des données du projet. En tout état de cause, la réalisation sera suivie par le personnel chargé des expériences, qui assurera également l'assemblage et l'insertion des dispositifs particuliers (pièges, détecteurs, etc.) ainsi que la réception générale.

d) Désassemblage des éléments, examens visuels et éventuellement dimensionnels, photographie des échantillons

Chaque plaque, ou élément combustible sera examiné visuellement dès réception, afin de déterminer l'état de la surface et de signaler d'éventuels défauts et anomalies, notamment les phénomènes de corrosion.

Chaque échantillon sera convenablement photographié et les défauts seront enregistrés et caractérisés, afin d'être bien mis en lumière en vue d'une éventuelle corrélation avec le relâchement des produits de fission, relâchement qui, dans ce cas, devrait accuser une évolution anormale.

On procédera si possible à la mesure dimensionnelle des défauts.

Le désassemblage et le découpage de parties de l'élément ou de la plaque seront effectués à l'aide d'une tronçonneuse aménagée dans une cellule. Le prélèvement de petites parties de plaque (par ex. 10 x 10 mm) sera assuré par tronçonnage à l'aide d'un emporte-pièce approprié.

e) Exécution de l'expérience

Cette phase du travail consistera à rechauffer la plaque ou l'élément dans le four de conditionnement, puis à recueillir et mesurer les produits de fission qui s'échappent, aussi bien par diffusion que par suite de la présence de défauts en surface ou en profondeur.

Les opérations à effectuer comprendront :

- Le contrôle du bon fonctionnement du four et des différentes parties du circuit (débit et pression constante du gaz dans les conduites, contrôle du niveau des fluides réfrigérants dans les pièges, etc.)
- L'enlèvement des pièges lorsqu'ils auront atteint le niveau d'activité convenu, et leur montage en parallèle.

- Le comptage par spectrométrie à canaux multiples des pièges contenant les gamma émetteurs, et envoi des pièges avec les bêta émetteurs aux postes d'analyse.
- A l'issue de l'expérience: extraction des échantillons et lavage du circuit à l'air ou à un gaz inerte. Régénération des tamis moléculaires en cas d'expérience avec gaz entraîneur (hélium) et préparation de l'expérience suivante.

f) Analyse des produits de fission recueillis

Sauf en cas de mesures directes en ligne sur quelques pièges sélectifs (par ex. Xe), il sera nécessaire de déplacer périodiquement les pièges en les permutant et d'analyser en laboratoire séparé les mélanges recueillis, soit par spectrométrie gamma, soit par séparation radiochimique et mesure individuelle des produits séparés.

Comme exemple et à titre préliminaire, on estime pouvoir déterminer les éléments suivants par spectrométrie gamma :

I^{131} , Xe^{133} , Xr^{85} , Ru^{103} , Cs^{137} , Nb^{95} ; et, par voie radiochimique:

Ru^{106} , Sr^{90} , Ce^{144} , éventuellement Pu^{239} (dans le cas d'éléments de combustible à enrichissement plus faible).

g) Détermination des produits de fission contenus dans des portions de combustible

La détermination de la teneur initiale (par plaque) en produits de fission donnés est nécessaire pour calculer le relâchement fractionnaire à partir du relâchement absolu, tiré des expériences.

On devra procéder à une première estimation (notamment pour pouvoir disposer d'un ordre de grandeur des activités à manipuler) en calculant les produits de fission, l'histoire nucléaire connue (ou supposé connue) de l'élément (temps et flux d'irradiation ou alternativement, taux d'épuisement atteint à la fin du cycle et temps d'irradiation, temps d'attente, etc.). En général, cependant, cette estimation approximative ne sera pas suffisante, notamment par suite de l'incertitude entourant l'histoire nucléaire, qui a pour effet de fausser le résultat final.

Il conviendra par conséquent de mesurer, au moins pour certains produits de fission, la teneur totale dans des fragments de plaques (fragment dont la localisation aura été bien choisie à l'avance).

On peut effectuer cette mesure de préférence par voie radiochimique, qui garantit une précision suffisante.

On peut également prévoir une mesure directe par fusion du fragment d'élément, et recueil des produits dans le circuit expérimental lui-même: cette expérience semble plus complexe que l'analyse radiochimique et donne lieu à de plus grandes incertitudes du fait de l'état chimique des produits aux températures plus élevées. On n'aura donc recours à cette expérience que si les données recueillies par les procédés mentionnés en premier lieu le font apparaître souhaitable.

Il sera nécessaire, à partir des données tirées de fragments d'élément, d'extrapoler à l'ensemble de la plaque, en prenant pour hypothèse une distribution du burn-up le long de l'élément découlant de données connues du comportement axial du flux thermique dans les réacteurs de recherche qui utilisent ces éléments.

BIBLIOGRAPHIE RELATIVE A LA PROPOSITION N° 2

- G.E. Creek, W.S. Martin, G.W. Parker, Experiments on the release of fission products from molten reactor fuels, ORNL 2616.
- A. Glassner, A Survey of the free energies of formation of the fluorides, chlorides, and oxides of the elements to 2500°K, ANL 5107.
- R.L. Loftness, A Vapor Pressure Chart for Metals, NAA-SR 132.
- C.T. Young, C.A. Smith, Preliminary Experiments on Fission Products Diffusion from Uranium-Impregnated Graphite in the Range 1800°-2200°C, NAA-SR 232.
- F.J. Keneshea, Jr. A.M. Saul, C.T. Young, The Distribution of Tracer Plutonium and Fission Products between Molten Uranium and Solid Uranium Oxide, Carbide and Nitride, NAA-SR 1032.
- G.W. Parker, G.E. Creek, Experiments on the Release of Fission Products from Molten Reactor Fuels, P/1074 Genève 1958, volume 11.
- Nuclear Safety Program Semiannual Progress Report for Period Ending June 30, 1964, ORNL 3691.
- Reactor Safety Conference, New York City, 31 octobre 1957, TID 7549.
- B. Lustman - Release of Fission Gases from UO_2 , WAPD 173.
- L. Brewer, The thermodynamic properties of the oxides, UCRL 104.

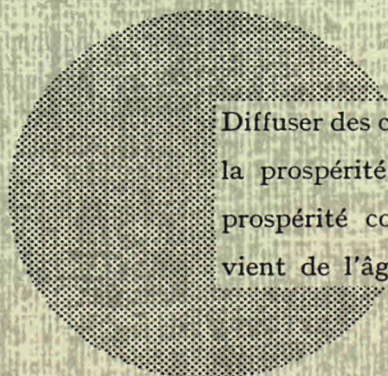
AVIS AU LECTEUR

Tous les rapports Euratom sont signalés, au fur et à mesure de leur publication, dans le périodique mensuel **EURATOM INFORMATION**, édité par le Centre d'information et de documentation (CID). Pour souscrire un abonnement (1 an : FF 75, FB 750) ou recevoir un numéro spécimen, prière d'écrire à :

Handelsblatt GmbH
"Euratom Information"
Postfach 1102
D-4 Düsseldorf (Allemagne)

ou à

Office de vente des publications
des Communautés européennes
2, Place de Metz
Luxembourg



Diffuser des connaissances c'est distribuer de la prospérité — j'entends la prospérité collective et non la richesse individuelle — et cette prospérité contribue largement à la disparition du mal qui nous vient de l'âge des ténèbres.

Alfred Nobel

BUREAUX DE VENTE

Tous les rapports Euratom sont vendus dans les bureaux suivants, aux prix indiqués au verso de la première page de couverture (lors de la commande, bien indiquer le numéro EUR et le titre du rapport, qui figurent sur la première page de couverture).

OFFICE CENTRAL DE VENTE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

2, place de Metz, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE
40-42, rue de Louvain - Bruxelles
BELGISCH STAATSBAD
Leuvenseweg 40-42, - Brussel

LUXEMBOURG

OFFICE CENTRAL DE VENTE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
9, rue Goethe - Luxembourg

DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER
Postfach - Köln 1

NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE
DES PUBLICATIONS DES
COMMUNAUTES EUROPEENNES
26, rue Desaix - Paris 15^e

ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE
P. O. Box 569 - London S.E.1

EURATOM — C.I.D.
51-53, rue Belliard
Bruxelles (Belgique)

CDNA03623FRC